

RESEARCH REPORT  
OF  
LABORATORY OF NUCLEAR SCIENCE  
TOHOKU UNIVERSITY

# 核 理 研 究 報 告

第 24 卷      第 1 号

1991 年 6 月

東 北 大 学 理 学 部

原 子 核 理 学 研 究 施 設

## 刊 行 規 定

1. 「核理研研究報告」は核理研共同利用による実験報告及びそれに直接関連した研究報告等を掲載します。
2. 本誌掲載の論文に対しては原則として審査を行っておりません。  
但し、特別の事情がある場合には投稿論文の掲載を拒否し、あるいは書き直しを求める事があります。
3. 本誌の論文を欧文の論文中に引用される際は Research Report of Laboratory of Nuclear Science, Tohoku University 又は Private Communication として引用する事とし、著者の承諾を得た上で引用して下さい。
4. 本誌は毎年6月と12月に発行します。

## 投 稿 規 定

1. 邦文の原稿はA4判400字詰原稿用紙を使用して下さい。用語は可能な限り文部省編さん「学術用語集」によって下さい。
2. 引用文献、記号、単位、数式、文字指定等は Journal of the Physical Society of Japan の「投稿の手引」に従って下さい。  
特に次の点について御注意下さい。  
原稿には添字、ギリシャ文字、イタリック、ゴシック、立体、まぎらわしい大文字及び小文字を赤鉛筆で指定して下さい。但し、文中の文字記号及び数式は原則としてイタリックで組みますので、単位及び元素記号、数式中特に立体とすべき文字記号は必ず立体の指定をして下さい。英文の原稿の場合は、イタリックの方を指定して下さい。
3. 図及び表には1枚毎に「第1図」、「第2表」のように番号を付けて下さい。図は全て墨入れし、縮尺又は刷り上がり寸法を記入して下さい。但し、1/3以下の縮尺は御遠慮下さい。
4. 図及び表の挿入個所を原稿に指定して下さい。
5. 図及び表の説明をそれぞれ別紙にまとめて原稿の末尾につけて下さい。
6. 原稿締切日は4月30日と10月31日です。原稿は下記あて提出して下さい。

仙台市太白区三神峯1-2-1 郵便番号 982

東北大学理学部原子核理学研究施設

「核理研研究報告」編集委員長

# 核理研研究報告 第24巻 第1号 目次

## I 原子核物理

- I-1 エネルギー移行37MeVにおける ${}^6\text{Li}(e, e'x)$ 反応の研究 ..... 1  
(核理研, 教養部\*)  
野村 昌弘, 玉江 忠明, 高久 圭二, 菅原 真澄,  
須田 利美\*, 宮瀬 晴久\*
- I-2  $(e, e'n)$ 反応による ${}^{13}\text{C}$ の巨大共鳴の研究 ..... 8  
(核理研, 教養部\*, 理学部物理\*\*)  
鈴木 伸介, 阿部 健\*, 斎藤悌二郎, 高桑 智恵,  
高久 圭二, 藤平 力\*\*, 中川 武美\*\*
- I-3  ${}^{40}\text{Ca}(e, e'n)$ 反応による巨大共鳴の研究 ..... 23  
(核理研, 理学部物理\*, 教養部\*\*)  
高桑 智恵, 斎藤悌二郎, 鈴木 伸介, 高久 圭二,  
藤平 力\*, 中川 武美\*, 阿部 健\*\*
- I-4 Measurement of  ${}^9\text{Be}(\gamma, pp)$  Reactions at  $80 < E_\gamma < 100\text{MeV}$  ..... 38  
(教養部, 核理研\*, メルボルン大\*\*)  
須田 利美, 前田 和茂, 伊藤 祥子\*, 今野 收\*,  
松山日出人\*, 野村 和泉\*, 菅原 康弘\*, 寺沢 辰生\*,  
M. Thompson\*\*, J. Eden\*\*, D. McLean\*\*, T. Bates\*\*
- I-5 Tagging Efficiency for an Uncollimated Photon Beam ..... 46  
(メルボルン大, 核理研\*)  
J. Eden, G. J. O'Keefe, R. P. Rassool, D. McLean,  
M. Thompson, 須田 利美\*, 野村 和泉\*, 横川 淳\*,  
今野 收\*, 寺沢 辰生\*, 鳥塚 賀治\*
- I-6 A treatment of the Final-state Interaction for Photoneuclear Reactions ..... 54  
(メルボルン大)  
J. Eden, M. Thompson

## II 放射化学

- II-1 The Influence of Metal Ions in the Solvent to the Complex Formation of  ${}^7\text{Be}$

|   |     |
|---|-----|
| Produced in Photonuclear Reaction .....   | 73  |
| (筑波大化学)   |     |
| 莊司 準  |     |
| II-2 メタロセン・マトリックス中における反跳原子の挙動 .....   | 77  |
| (理学部化学)   |     |
| 松江 秀明, 関根 勉, 吉原 賢二  |     |
| II-3 光量子放射化による高純度材料中のフッ素の分析 .....   | 84  |
| (三菱マテリアル中研, 核理研*, 金研**)   |     |
| 桜井 宏行, 深谷 忠廣, 川上 紀, 佐山 恭正,  |     |
| 榎本 和義*, 八木 益男**   |     |
| II-4 ザクロ石の微量元素組成 .....  | 93  |
| (教養部, 理学部地学*)   |     |
| 吉田 武義, 青木謙一郎*   |     |
| II-5 東北本州弧, 秋田焼山火山噴出物の地球化学的研究 .....   | 110 |
| (理学部地学, 教養部*)   |     |
| 大場 司, 吉田 武義*, 青木謙一郎   |     |
| II-6 Mass and Temperature Dependence of Isotope Effect for self-Diffusion of<br>Copper and Impurity-Diffusion of Copper in Aluminum .....   | 128 |
| (工学部材料物性)   |     |
| 藤川辰一郎, 牛野 俊一  |     |
| II-7 Impurity-Diffusion of Manganese in Aluminum and Analysis of Interdiffusion<br>Experiments in Al/Mn Artificial Multilayered Films ..... | 143 |
| (工学部材料物性, 理学部*)   |     |
| 藤川辰一郎, 西畑 保雄*   |     |
| III 加速器・測定装置  |     |
| III-1 150MeVパルスビーム・ストレッチャーへのRF系の導入 (I) .....  | 157 |
| (核理研)   |     |
| 加藤 龍好, 菅原 真澄, 小山田正幸, 玉江 忠明,   |     |
| 浦澤 茂一, 今野 收, 中里 俊晴, 庭野 智,   |     |

江口 剛

Ⅲ-2 ビームチョップを用いたバンチ短縮 .....165

(核理研<sup>\*</sup>, 科研<sup>\*</sup>, 工学部応用物理<sup>\*\*</sup>)

庭野 智, 小山田正幸, 浦澤 茂一, 中里 俊晴,  
栗原 亮, 高橋 重伸, 柴崎 義信, 加藤 龍好,  
池沢 幹彦<sup>\*</sup>, 大坂 俊明<sup>\*</sup>, 柴田 行男<sup>\*</sup>,  
伊師 君弘<sup>\*</sup>, 蔦谷 勉<sup>\*</sup>, 高橋 俊晴<sup>\*</sup>  
三代 秀昭<sup>\*</sup>, 荒井 史隆<sup>\*</sup>, 近藤 泰洋<sup>\*\*</sup>

Ⅲ-3 サブミリからミリ波領域におけるコヒーレント・チェレンコフ放射の観測 .....182

(科研, 工学部応用物理<sup>\*</sup>, 核理研<sup>\*\*</sup>)

高橋 俊晴, 柴田 行男, 荒井 史隆, 伊師 君弘,  
大坂 俊明, 蔦谷 勉, 池沢 幹彦, 近藤 泰洋<sup>\*</sup>,  
中里 俊晴<sup>\*\*</sup>, 浦澤 茂一<sup>\*\*</sup>, 加藤 龍好<sup>\*\*</sup>,  
庭野 智<sup>\*\*</sup>, 小山田正幸<sup>\*\*</sup>

Ⅲ-4 回折格子分光計によるコヒーレント放射光の高分解分光測定 .....191

(科研, 工学部応用物理<sup>\*</sup>, 核理研<sup>\*\*</sup>)

柴田 行男, 高橋 俊晴, 荒井 史隆, 伊師 君弘,  
大坂 俊明, 蔦谷 勉, 池沢 幹彦, 近藤 泰洋<sup>\*</sup>,  
加藤 龍好<sup>\*\*</sup>, 庭野 智<sup>\*\*</sup>, 中里 俊晴<sup>\*\*</sup>,  
浦澤 茂一<sup>\*\*</sup>, 小山田正幸<sup>\*\*</sup>

Ⅲ-5 電子ビーム照射による各種金属の温度分布(Ⅱ).....199

(高工研, 核理研<sup>\*</sup>, 石川島播磨重工)

百瀬 丘, 今野 収<sup>\*</sup>, 平山 英夫, 土屋 将夫<sup>\*\*</sup>,  
西田 耕作<sup>\*\*</sup>, 石丸 肇

Ⅲ-6 BaF<sub>2</sub>  $\gamma$ 線検出器の応答関数の測定 .....208

(東工大理学部, 京大理学部<sup>\*</sup>, サイクロ RIセンター<sup>\*\*</sup>, 核理研<sup>\*\*\*</sup>, 教養部<sup>\*\*\*\*</sup>)

沢田 真也, 古高 和禎<sup>\*</sup>, 保坂 将人<sup>\*\*</sup>, 村上 健<sup>\*</sup>,  
村上 哲也, 笠木治郎太<sup>\*</sup>, 石井 慶造<sup>\*\*</sup>, 伊藤 祥子<sup>\*\*\*</sup>,  
松山日出人<sup>\*\*\*</sup>, 佐々木隆興<sup>\*\*\*</sup>, 寺沢 辰生<sup>\*\*\*</sup>,  
須田 利美<sup>\*\*\*\*</sup>, 前田 和茂<sup>\*\*\*\*</sup>

III-7 Low Temperature-High Pressure Apparatus for TOF Neutron Diffraction .....213

(富山大教養, 筑波大物理\*, 金研\*\*)

神垣 知夫, 石川 義和, 森 克徳, 鈴木 隆司\*,  
富吉 昇一\*\*

IV 加速器稼働状況

IV-1 平成2年度マシン報告 .....217

(核理研マシングループ)

栗原 亮, 浦澤 茂一, 大沼 忠弘, 小山田正幸,  
柴崎 義信, 高橋 重伸, 中里 俊晴, 武藤 正勝

V 論文リスト .....223

Research Report of Laboratory of Nuclear Science  
Volume 24, Number 1, June 1991  
Contents

I Nuclear Physics

- I - 1  ${}^6\text{Li}(e, e'x)$  Reaction at Energy Transfer 37 MeV ..... 1  
Masahiro Nomura, Tadaaki Tamae, Keiji Takahisa,  
Masumi Sugawara, Toshimi Suda and Haruhisa Miyase
- I - 2 The Study of the Giant Resonance in  ${}^{13}\text{C}(e, e'n)$  ..... 8  
Shinsuke Suzuki, Ken Abe, Teijiro Saito, Chie Takakuwa,  
Keiji Takahisa, Tsutomu Tohei and Takemi Nakagawa
- I - 3 The Study of the Giant Resonance in  ${}^{40}\text{Ca}(e, e'n)$  Reaction (II) ..... 23  
Chie Takakuwa, Teijiro Saito, Shinsuke Suzuki, Keiji Takahisa,  
Tsutomu Tohei, Takemi Nakagawa and Ken Abe
- I - 4 Measurement of  ${}^9\text{Be}(\gamma, pp)$  Reactions at  $80 < E_\gamma < 100 \text{ MeV}$  ..... 38  
Toshimi Suda, Shigekazu Maeda, Sachiko Ito, Osamu Konno,  
Hideto Matsuyama, Izumi Nomura, Yasuhiro Sugawara,  
Tatsuo Terasawa, M. Thompson, J. Eden, D. McLean and T. Bates
- I - 5 Tagging Efficiency for an Uncollimated Photon Beam ..... 46  
James Eden, G. J. O' Keefe, R. P. Rassool, David McLean,  
Maxwell Thompson, Toshimi Suda, Izumi Nomura, Jun Yokokawa,  
Osamu Konno, Tatsuo Terasawa and Yoshiharu Torizuka
- I - 6 A Treatment of the Final-State Interaction for Photonuclear Reactions ..... 54  
James Eden and Maxwell Thompson

II Radiochemistry

- II - 1 The Influence of Metal Ions in the Solvent to the Complex Formation of  ${}^7\text{Be}$   
Produced in Photonuclear Reaction ..... 73  
Hitoshi Shoji
- II - 2 Chemical Behavior of Recoil Atoms in Metallocene Matrix ..... 77

Hideaki Matsue, Tsutomu Sekine and Kenji Yoshihara

- II - 3 Determination of Fluorine in High Purity Materials by Photon Activation Analysis ..... 84  
Hiroyuki Sakurai, Tadahiro Fukaya, Osamu Kawakami,  
Yasumasa Sayama, Kazuyoshi Masumoto and Masuo Yagi
- II - 4 Trace Elemental Abundances of Some Garnets ..... 93  
Takeyoshi Yoshida and Ken-ichiro Aoki
- II - 5 Geochemistry of the Rocks from Akita-Yamagata Volcano, NE Honshu Arc .....110  
Tsukasa Ohba, Takeyoshi Yoshida and Ken-ichiro Aoki
- II - 6 Mass and Temperature Dependence of Isotope Effect for Self-Diffusion of Copper and Impurity-Diffusion of Copper in Aluminum .....128  
Shin-ichiro Fujikawa and Shun-ichi Ushino
- II - 7 Impurity-Diffusion of Manganese in Aluminum and Analysis of Interdiffusion Experiments in Al/Mn Artificial Multilayered Films .....143  
Shin-ichiro Fujikawa and Yasuo Nishihata
- III Accelerator and Instrumentation
- III - 1 Feasibility Study of an RF System for SSTR - the 150 MeV Pulse Stretcher ( I ) .....157  
Ryukou Kato, Masumi Sugawara, Masayuki Oyamada,  
Tadaaki Tamae, Shigekazu Urasawa, Osamu Konno,  
Toshiharu Nakazato, Satoshi Niwano and Takeshi Eguchi
- III - 2 Upgrading of Injector System by Beam Chopper .....165  
Satoshi Niwano, Masayuki Oyamada, Shigekazu Urasawa,  
Toshiharu Nakazato, Akira Kurihara, Shigenobu Takahashi,  
Yoshinobu Shibasaki, Ryukou Kato, Mikihiro Ikezawa,  
Toshiaki Ohsaka, Yukio Shibata, Kimihiro Ishi, Tsutomu Tsutaya,  
Toshiharu Takahashi, Hideki Mishiro, Fumitaka Arai and  
Yasuhiro Kondo



|                                     |  |     |
|-------------------------------------|--|-----|
| III - 3                             | Observation of Coherent Cherenkov Radiation at Submillimeter and Millimeter Wavelengths .....  | 182 |
|                                     | Toshiharu Takahashi, Ikuo Shibata, Kimihiro Ishi, Toshiaki Ohsaka,<br>Tsutomu Tsutaya, Mikihiko Ikezawa, Yasuhiro Kondo,<br>Toshiharu Nakazato, Shigekazu Urasawa, Ryukou Kato,<br>Satoshi Niwano and Masayuki Oyamada                 |     |
| III - 4                             | High Resolution Spectrum of Coherent Synchrotron Radiation by Grating Spectrometer .....   | 191 |
|                                     | Yukio Shibata, Toshiharu Takahashi, Fumitaka Arai, Kimihiro Ishi,<br>Tsutomu Tsutaya, Toshiaki Ohsaka, Mikihiko Ikezawa,<br>Yasuhiro Kondo, Ryukou Kato, Satoshi Niwano, Toshiharu Nakazato,<br>Shigekazu Urasawa and Masayuki Oyamada |     |
| III - 5                             | Temperature Distribution During Electron Beam Irradiation on Several Metals and Absorbers for Vacuum System (II) .....   | 199 |
|                                     | Takashi Momose, Osamu Konno, Hideo Hirayama, Masao Tsuchiya,<br>Kosaku Nishida and Hajime Ishimaru   |     |
| III - 6                             | Response of BaF <sub>2</sub> Scintillation Detectors to Gamma-Rays, $20 \leq E_{\gamma} \leq 80$ MeV .....   | 208 |
|                                     | Shinya Sawada, Kazuyoshi Furutaka, Masato Hosaka,<br>Takeshi Murakami, Tetsuya Murakami, Jirohta Kasagi, Keizo Ishii,<br>Sachiko Ito, Hideto Matsuyama, Takaoki Sasaki, Tatsuo Terasawa,<br>Toshimi Suda and Kazushige Maeda           |     |
| III - 7                             | Low Temperature-High Pressure Apparatus for TOF Neutron Diffraction .....  | 213 |
|                                     | Kazuo Kamigaki, Yoshikazu Ishikawa, Katsunori Mori, Kenji Suzuki<br>and Syouichi Tomiyoshi   |     |
| IV Status Report on the Accelerator |  |     |
| IV - 1                              | Status of the Electron Linac .....   | 217 |
|                                     | Akira Kurihara, Shigekazu Urasawa, Tadahiro Onuma,   |     |

Masayuki Oyamada, Yoshinobu, Shibazaki, Shigenobu Takahashi,  
Toshiharu Nakazato and Masakatsu Mutoh

V List of Publications.....223

# I. 原 子 核 物 理

エネルギー移行37MeVにおける  ${}^6\text{Li}(e, e'x)$  反応の研究

核理研, 教養部\*

野村昌弘・玉江忠明・高久圭二

菅原真澄・須田利美\*・宮瀬晴久\*

## §1. 序

今回標的核として用いた  ${}^6\text{Li}$  は  $\alpha$ -d, t- ${}^3\text{He}$  等のクラスター模型を研究するうえで古くから使用され, 電子散乱<sup>1)</sup>,  $(\gamma, d)$ <sup>2)</sup>,  $(\gamma, t)$  実験<sup>3)</sup> が行なわれてきた。最近では高運動量移行が可能で高エネルギー加速器により準弾性散乱領域での  $(e, e'p)$  実験<sup>4)</sup> が行なわれ p-shell, s-shell の陽子の運動量分布が測定されている。又, 光核反応では, 標識付光子<sup>5)</sup> による p-shell, s-shell の陽子の高運動量成分の測定や高い missing energy 領域での二核子による光子の吸収の研究などが行なわれている。

今回我々が行なった実験は, エネルギー移行  $\omega=37\text{MeV}$ , 運動量移行  $q=63\text{MeV}/c$  という今までに行なわれた事のない実験領域である。今回の  $(e, e'p)$  実験を, 準弾性散乱領域での  $(e, e'p)$  実験と比較すると, photon point に近い非常に低い運動量移行での実験にあたる。この事は今回の実験で測定する運動量分布が準弾性散乱領域での  $(e, e'p)$  実験で測定された運動量分布と標識付光子により測定された運動量分布とをつなぐ非常に有意義な領域にあたる事を意味する。又, 光核反応と比較すると光核反応は横成分のみによる反応であるが  $(e, e'p)$  実験では縦成分及び同時計数実験の特徴である干渉項成分による反応も加わってくる。他方  $(e, e't)$ ,  $(e, e'{}^3\text{He})$  実験の意義としては仮想光子では初めての実験である事, 更に横横干渉項成分より得られる analyzing power がクラスター模型に関して新しい情報を与える事ができるなどが挙げられる。

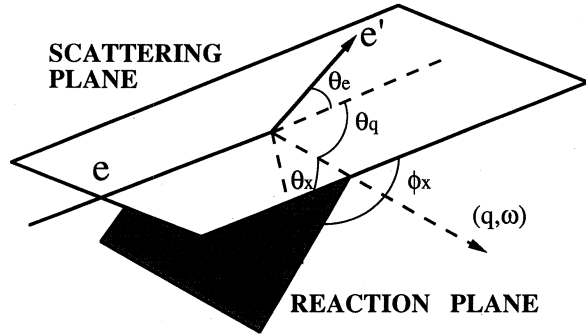
## §2. 実験装置

実験には東北大学原子核理学研究施設の300MeV電子線加速器から得られる電子線を用いた。ライナックで加速されたパルス電子線はパルスビーム・ストレッチャーにより直流化された後, 散乱槽内の標的に照射される。散乱された電子は二重集束型磁気スペクトロメータにより運動量分析され, その焦点面と平行に置かれた垂直型ドリフトチェンバー (VDC) 及び二層のプラスチック・シンチレーターにより検出される。他方標的核から放出された荷電粒子は, 散乱

な実験データはVDCのドリフト時間, SSDの波高値及びプラスチック・シンチレーターとSSDとの時間差である。

### §3. 実験

実験は東北大学300MeV電子ライナック, パルスビームストレッチャーからのエネルギー134MeV連続電子線を用いて行なった。標的核には95%に濃縮した厚さ約10mg/cm<sup>2</sup>の<sup>6</sup>Liを使用した。標的核により散乱された電子は $\theta_e=26^\circ$ に置かれた磁気スペクトロメータ及び垂直型ドリフトチェンバーにより検出される。この時仮想光子による標的核へのエネルギー移行, 運動量移行はそれぞれ37MeV, 63MeV/cである。

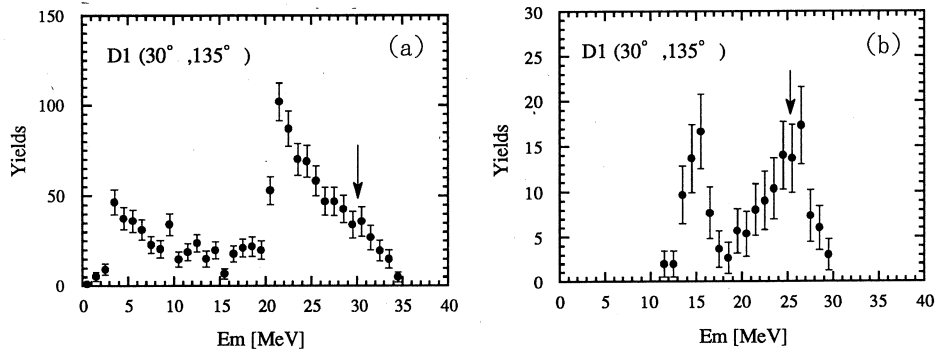


第1図 運動力学。

$\theta_e$ =電子散乱角。 $\omega$ =エネルギー移行。 $q$ =運動量移行。 $\theta_x$ =運動量移行と放出粒子のなす角。 $\phi_x$ =散乱平面(入射電子と散乱電子の作る平面)と反応平面(放出粒子と運動量移行の作る平面)とのなす角。

実験の運動力学を第1図に示す。なおXは放出粒子を示し, この実験では陽子(p)とtriton(t)である。標的核から放出される荷電粒子はSSDにより測定し,  $E-AE$ 法により粒子識別を行なった。SSDは $(\theta_x, \phi_x) = (0^\circ, -), (30^\circ, 90^\circ), (30^\circ, 135^\circ), (60^\circ, 90^\circ), (60^\circ, 135^\circ), (180^\circ, -)$ に設置し, 同時計数実験の特徴である干渉項の測定も行なった。

$(\theta_x, \phi_x) = (30^\circ, 135^\circ)$ で測定されたproton及びtritonのmissing energy spectrumを第2図に示す。missing energy  $E_m$ は以下に定義される量である。



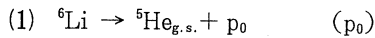
第2図 Missing Energy Spectrum (a) proton, (b) triton.  
( $\theta_x, \phi_x$ )=(30°, 135°)におけるMissing Energy Spectrum。  
図中の矢印は検出器のしきい値を示す。

$$E_m = \omega - E_X - E_R$$

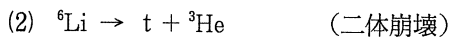
$\omega$ ,  $E_X$ ,  $E_R$  はそれぞれエネルギー移行, 放出粒子  $X$  のエネルギー, 残留核の反跳エネルギーを表す。

#### §4. 解析

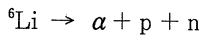
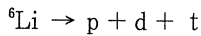
先ず初めに missing energy spectrum により反応の分離を行なう。missing energy spectrum から一義的に決まる反応として, 陽子の missing energy spectrum からは,



$t$ ,  ${}^3\text{He}$  の missing energy spectrum からは



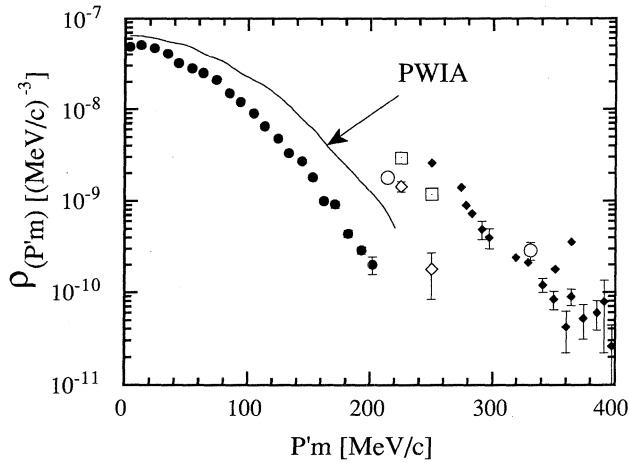
がある。又, 陽子の missing energy spectrum の high missing energy 領域では,



等の反応が考えられる。解析は, 初めに特定できた(1), (2)の反応を調べ次に陽子の high missing energy 領域での陽子放出反応を調べる。

##### 4.1 ${}^6\text{Li} \rightarrow {}^5\text{He}_{g.s.} + p_0$ 反応

準弾性散乱領域での  $(e, e'p)$  実験及び, エネルギー移行, 運動量移行が等しい  ${}^{16}\text{O}(e, e'p_0)$  実験からの類推により,  $E_m = 0 \sim 8 \text{ MeV}$  のピークは p-shell の陽子が直接過程により叩き出されたとし解析を行なう。先ず初めに実験で得られた断面積を核内での陽子と電子との断面積である  $\sigma_{ep}$  で規格化し spectral function  $S(P_m, E_m)$  を求める。そしてこの  $S(P_m, E_m)$  を  $E_m = 0 \sim 8 \text{ MeV}$  の範囲で積分し p-shell の運動量分布を求める。得られる運動量分布と準弾性散乱領域での  $(e, e'p)$  実験結果<sup>6)</sup> 及びクラスター模型による PWIA の計算値を第 3 図に示す。我々の実験値は  ${}^6\text{Li}(p, p)$  実験より得られた光学ポテンシャルを使い終状態相互作用の影響を取り除いてある。我々の実験値はクラスター模型による PWIA の計算値と滑らかにつながる。一方この計算値は終状態相互作用を考慮すると準弾性散乱領域での  $(e, e'p)$  実験結果を再現する。この様に断面積の大きさは直接過程を考えると説明できるが, 実験に現われた  $\phi$  依存性は説明できない。主な原因としては陽子放出過程が直接過程だけではなく共鳴を経由して放出される過程が含まれている為と考えられる。

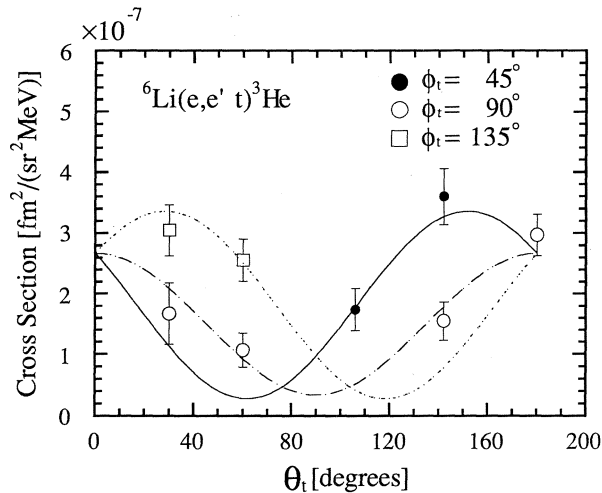


第3図 Proton Momentum Distribution (p-shell).

●は準弾性散乱領域での (e, e'p) 実験により得られた運動量分布。○□◇は今回の実験で得られた運動量分布。□◇はそれぞれ  $\phi_p = 135^\circ, 90^\circ$  での値を示し、この差は干渉項によるものである。図中の曲線はクラスター模型のPWIAによる運動量分布の計算値を示す。●以外は終状態相互作用による歪曲の効果を取り除いてある。

#### 4.2 ${}^6\text{Li} \rightarrow t + {}^3\text{He}$ 反応

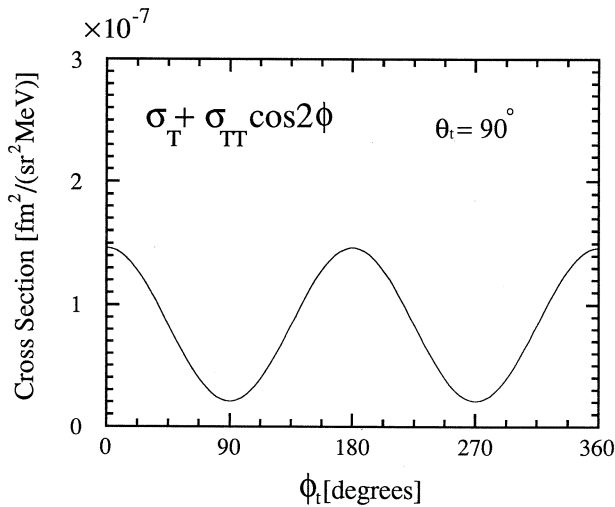
先ず初めに ( $\gamma, t$ ) 実験結果<sup>3)</sup>, クラスター模型による計算結果から多重極度 = 1 までとし実験で得られた角度分布に  $\chi^2$ -fitting を行なう。  $\chi^2$ -fitting の様子を第4図に示す。非常に良く実験値を再現している。次に C1, E1 を仮定し角度分布を決めるパラメータ  $a_2$  を求める、



第4図 Triton角度分布。

図中の曲線は多重極度1の角度分布を表す関数で実験値に  $\chi^2$ -fitting した曲線を示す。

$a_2 = -0.86 \pm 0.35$ と光核反応で得られた  $a_2 = -1$  に近い値が得られた。又、 $\chi^2$ -fittingにより求められた横成分と横横干渉項成分の  $\phi_t$  依存性を第5図に示す。これは、偏極した光子を使用した実験に他ならない。今回の実験条件では仮想光子の偏極度は86%と非常に高い。この角度分布より analyzing power  $A$  を求めると、 $A = 0.87 \pm 1.0$  が得られる。今回の実験では誤差が大きくこれ以上の議論はできないが、この analyzing power  $A$  の値はこの反応が  $t$ - ${}^3\text{He}$  のクラスターがそのまま崩壊した反応なのか、 $\alpha$ -d クラスターの  $\alpha$  が壊れて出てきた反応なのかを決める重要な物理量である。

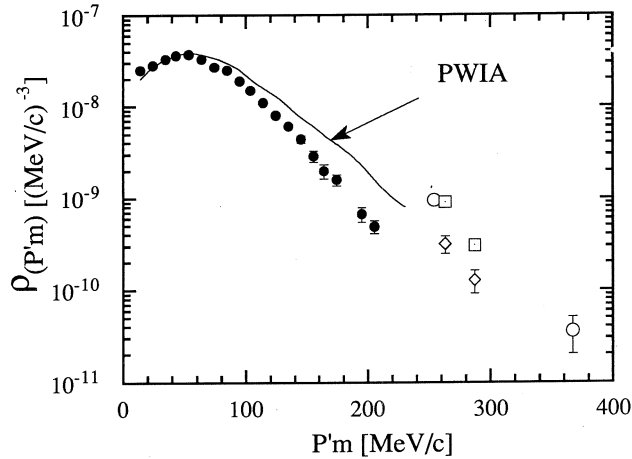


第5図  $\phi_t$  方向角度分布。  
 $\theta_t = 90^\circ$  における横成分 ( $\sigma_T$ )、横横干渉項成分 ( $\sigma_{TT}$ ) の  $\phi_t$  方向角度分布。

#### 4.3 Proton in the high missing energy region

準弾性散乱領域での  $(e, e'p)$  実験<sup>6)</sup> 及び、標識付光子による  $(\gamma, p)$  実験<sup>5)</sup> からの類推により、 $E_m = 20 \sim 25 \text{ MeV}$  のピークは s-shell の陽子が直接過程により叩き出されたとし解析を行なう。解析は  $p_0$  反応と同じ方法で行ない運動量分布を求める。得られた結果を第6図に示す。今回の実験値は、クラスターモデルによる PWIA の計算値より大きな値を示す。特に高い運動量成分では実験値のほうがかなり大きい。これは他の反応からの陽子が含まれている事を意味する。このことに関して、triton の missing energy spectrum の  $E_m \geq 21 \text{ MeV}$  の領域で  ${}^6\text{Li} \rightarrow p + d + t$  反応、 ${}^6\text{Li} \rightarrow p + p + n + t$  反応からの  $t$  を測定することができた。つまり  $E_m = 20 \sim 25 \text{ MeV}$  の領域には triton を放出する反応からの陽子が含まれている。



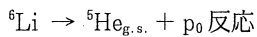


第6図 Proton Momentum Distribution (s-shell).

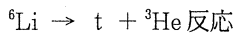
●◆はそれぞれ準弾性散乱領域での  $(e, e'p)$  実験,  $(\gamma_{\text{tag}}, p)$  実験により得られた運動量分布。○□◇は今回の実験で得られた運動量分布。□◇はそれぞれ  $\phi_p = 135^\circ, 90^\circ$  の値を示し、この差は干渉項によるものである。図中の曲線はクラスター模型のPWIAによる運動量分布の計算値を示す。●以外は終状態相互作用による歪曲の効果を取り除いてある。

## §5. 結論

今回比較的高いエネルギー領域での  $(e, e'x)$  実験を行なった。 $(e, e'p)$  実験からは, p-shell, s-shellから直接過程で叩き出されたと考えられる陽子が測定できた。又,  $(e, e't)$ ,  $(e, e'^3\text{He})$  反応からは同時計数実験の特徴である干渉項から  $t-^3\text{He}$  二体崩壊における偏極度を求めることができた。以下に今回の実験で得られた結果をまとめる。



核内での陽子の運動量分布から断面積の大きさは説明できるが,  $\phi_p$  依存性は説明することができない。主な原因としては陽子放出過程が直接過程だけではなく共鳴を経由する過程が含まれている為と考えられる。



C1, E1のみで非常に良く実験値を再現する。又角度分布を決めるパラメータ  $a_2 = -0.86 \pm 0.35$  が得られ, 更に横-横干渉項により Analyzing Power  $A = 0.87 \pm 1.0$  が得られた。

Proton in the high missing energy region

$E_m = 20 \sim 25 \text{ MeV}$  のピークは s-shellから陽子が直接過程により叩きだされたものとする, 実験値はクラスター模型によるPWIAの計算値より大きな値を示す。これは  ${}^6\text{Li} \rightarrow p + d + t$  反応,  ${}^6\text{Li} \rightarrow p + p + n + t$  反応からの陽子が含まれている事を意味する。このことに関して,

triton の missing energy spectrum の  $E_m \geq 21\text{MeV}$  の領域でこれらの反応からの triton の寄与を求めることができた。

### 参 考 文 献

- 1) J. C. Bergstrom *et al.* : Nucl. Phys. **A327** (1979) 439.
- 2) H. Taneichi *et al.* : Nucl. Phys. **A448** (1986) 315.
- 3) G. Junghans *et al.* : Z Physik **A291** (1979) 353.
- 4) J. B. J. M. Lanen *et al.* : Phys. Rev. Lett. **62** (1989) 2925.
- 5) I. Nomura : Dr. Thesis, Tohoku University, 1989.
- 6) J. B. J. M. Lanen *et al.* : Phys. Rev. Lett. **63** (1989) 2793.

$(e, e' n)$  反応による $^{13}\text{C}$ の巨大共鳴領域の研究

核理研, 教養部物理\*, 理学部物理\*\*;  
 鈴木伸介・阿部 健\*・斎藤悌二郎  
 高桑智恵・高久圭二・藤平 力\*\*  
 中川武美\*\*

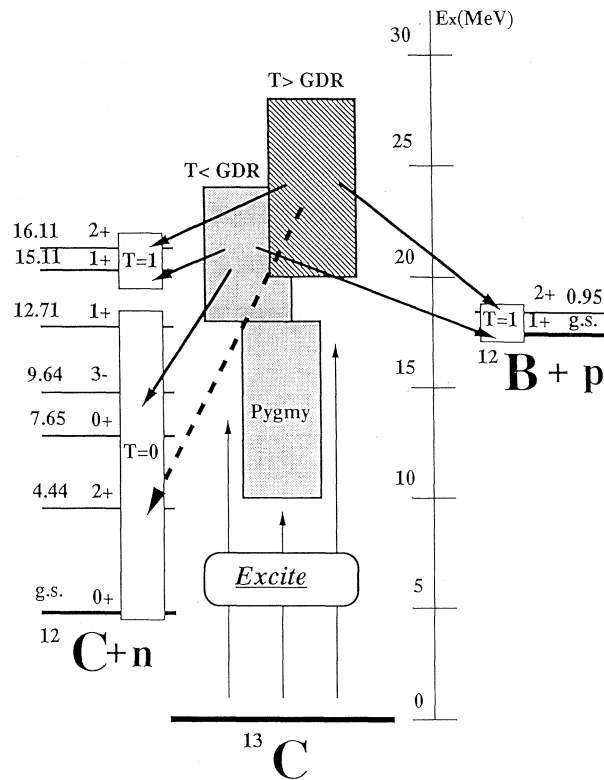
## §1. 序 論

軽核では残留核の崩壊チャンネルが疎であることから崩壊準位の同定が比較的容易である。E 1 巨大共鳴崩壊は光核反応などにおいてよく研究されているが、その多くは残留核の状態を特定しないか、残留核を低励起状態に残す崩壊の測定であった。巨大共鳴から多くの崩壊チャンネルが開かれたときには、他の反応（電子散乱や $(\gamma, p)$ との比較）によって崩壊チャンネルを類推することはあったが、残留核の高励起状態への崩壊を直接測定した例はほとんどない。核子放出を伴う共鳴の崩壊機構を知るためにはこの様な高励起状態への崩壊の測定が必要であると考えられる。

$^{13}\text{C}$ は準閉殻状態である $^{12}\text{C}$ に valence nucleon として  $1p_{1/2}$  殻に中性子が1個ついた中性子過剰核であり、valence nucleon の振舞いを調べる上でよく用いられる原子核である。 $^{13}\text{C}$ は中性子の放出閾値が低く(4.95MeV),  $^{12}\text{C}$ (18.7MeV)と比較しても巨大共鳴領域(20~25 MeV)に励起されたときに、崩壊可能な準位が多い。よって、励起エネルギーと崩壊チャンネルを測定することによって、巨大共鳴からの崩壊が直接または準直接過程によるものか、蒸発過程によるものかという知見を我々に与えることが出来る。またその角分布の測定によって、更に高次の多重極度の共鳴に関する情報を得ることが出来る。

これらを目的として入射エネルギー129MeV, 散乱電子角度 $30^\circ$ , 励起エネルギー10~28 MeV で $^{13}\text{C}(e, e' n)$ の測定を行った。

$^{13}\text{C}$ の基底状態は $T=1/2$ であり、isovector E 1 励起によってその励起状態は $T=1/2(T_{<})$ ,  $T=3/2(T_{>})$ の状態をとり得る。 $^{13}\text{C}(e, e' n)$ 反応に関係する準位図を第1図に示す。光核反応における $^{13}\text{C}$ 巨大共鳴の研究は終状態を決定しない $(\gamma, n_{\text{total}})^{1-4)}$ アイソスピンの選択則より $T_{<}$ を選択的に励起することの出来る $(\gamma, n_0)$ ,  $(\gamma, n_1)^{5-6)}$ 測定などが行われている。 $(\gamma, n_{\text{total}})$ と $(\gamma, n_{0,1})$ の比較を行うと、13MeV付近を中心としたピグミー共鳴は $^{12}\text{C}$ の基底状態及び第一励起状態にほぼ均等に崩壊し、21MeVを中心としたGDRはほとんど



第1図  $^{13}\text{C}(e, e' n)$  反応関係の準位図。

基底状態の崩壊するようにみられ、第一励起状態にはほとんど崩壊しない。その他電子散乱<sup>7)</sup>や  $(\gamma, p)$  反応<sup>8)</sup>などの比較により、21MeV を中心に  $T_<$  の巨大共鳴が、25MeV を中心に  $T_>$  の巨大共鳴が存在し、アイソスピン分岐が起こっていると考えることが出来る。

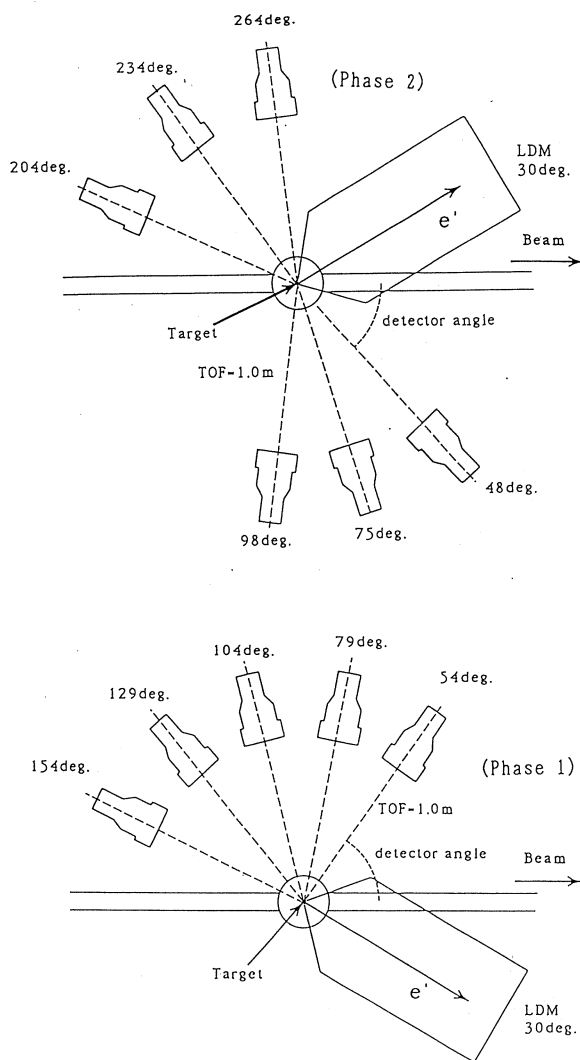
## §2. 実 験

実験は東北大学理学部附属原子核理学研究施設の300MeV 電子線加速器及びパルスビーム・ストレッチャーからのエネルギー129MeV の連続電子線を用いて行った。 $^{13}\text{C}$  の標的は、 $^{13}\text{C}$  粉末（純度99.2%）を圧縮器を用い約27t/cm<sup>2</sup>の圧力をかけて直径22mmの円盤状に作製したものをを用いた。厚さは154mg/cm<sup>2</sup>である。平均ビーム電流は50~80nAで行った。

標的核により散乱された電子はスペクトロメータに入り運動量分析され、MWPCにより位置検出される。MWPCの直後に配置されたプラスチックシンチレータと組み合わせられS/N

比の向上が図られている。

中性子のエネルギーを決定するのに TOF (Time of Flight) 法を用いた。散乱電子を検出した時間と中性子を検出した時間の差をとり TOF を求める。検出器に NE213 液体シンチレーターを用いた。NE213 シンチレーターは  $\phi 180 \times 100\text{mm}$  (2544ml) の円筒型のアルミケース及びガラス窓のケースに納められている。実験は 2 回に分けて行われた。各々の検出器の配置角度はビーム下流方向より散乱電子と反対方向を正にとって、54, 79, 104, 129, 154° 及び 48, 73, 98, 204, 234, 264° であった。検出器の配置図を第 2 図に示す。今回の測定では



第 2 図 検出器の配置図。

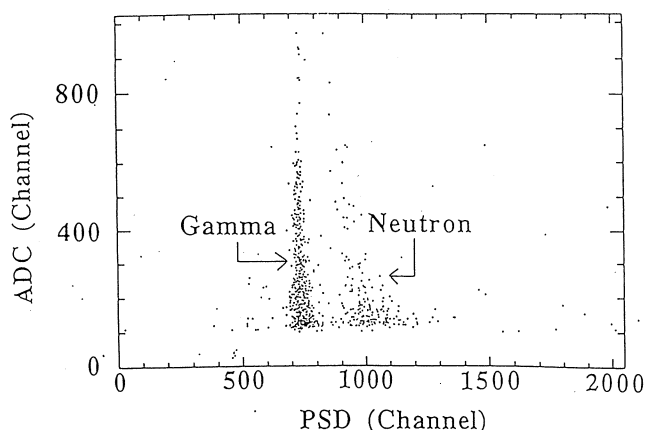
48° の検出器はS/N比が悪く、解析には用いなかった。

プラスチックシンチレーターの信号やMWPCの信号、中性子検出器の信号は高速回路系によって処理されデータ収集系により取り込まれ、磁気テープ (MT) に記憶される。データ処理系には ODET system<sup>9)</sup>を用いた。

実験時にオンラインでMTに取り込まれたリストデータは、各イベントについて各種の条件にしたがいゲートをかけられ真の同時計数イベントのみに選別される。

### §3. 断面積の導出

リストデータで取り込んだデータから Pulse Shape Discriminator (PSD) 及び Charge Comparison 法 (C. C. 法) を用いて  $\gamma$ 線による事象の除去を行う。中性子検出器のパルス波高と PSD を2次元で表示したものを第3図に示す。このプロットより中性子のイベントのみ



第3図 PSDを用いた中性子- $\gamma$ 線弁別。

を取り出すようにゲートを設定し、中性子と $\gamma$ 線の弁別を行った。これから分かるように中性子検出器に入射する粒子の9割以上が $\gamma$ 線であり、(e, e' $\gamma$ n)測定のもっとも大きなバックグラウンドとなっている。PSDによる中性子- $\gamma$ 線弁別のみでは $\gamma$ 線を落としきれないRUNや前方に置いた検出器ではさらにC. C.法による中性子- $\gamma$ 線弁別を行ない、S/N比の向上に努めた。

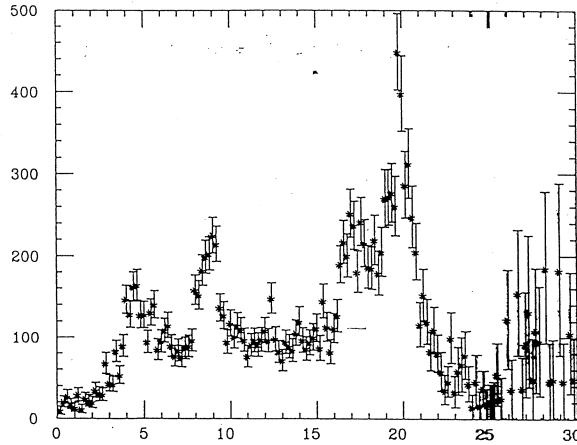
散乱電子系の検出効率<sup>10)</sup>は<sup>12</sup>Cの弾性散乱の測定により決定した。また中性子検出器の検出効率は<sup>252</sup>Cfを用い実験的に決定した<sup>10)</sup>。

入射エネルギー $E_i$  (MeV), 散乱電子エネルギー $E_f$  (MeV), TOFから求められた中性子

の運動エネルギー $E_n$  (MeV), 運動学的に決定される残留核の反跳エネルギー $E_r$  (MeV) を用いて, ミッシングエネルギー $E_m$ が次のように求められる。

$$E_m = E_i - E_f - E_n - E_r \quad (1)$$

残留核の励起エネルギーは $E_m - 4.95$  (MeV) になる。ミッシングエネルギースペクトルの例を第4図に示す。 $E_m = 5$  MeV 付近にみられるピークが $^{12}\text{C}$ の基底状態に対応し, 9 MeV 付近, 17 MeV 付近, 20 MeV 付近のピークがそれぞれ残留核 $^{12}\text{C}$ の励起準位4.4 MeV ( $2^+$ ,  $T=0$ ),

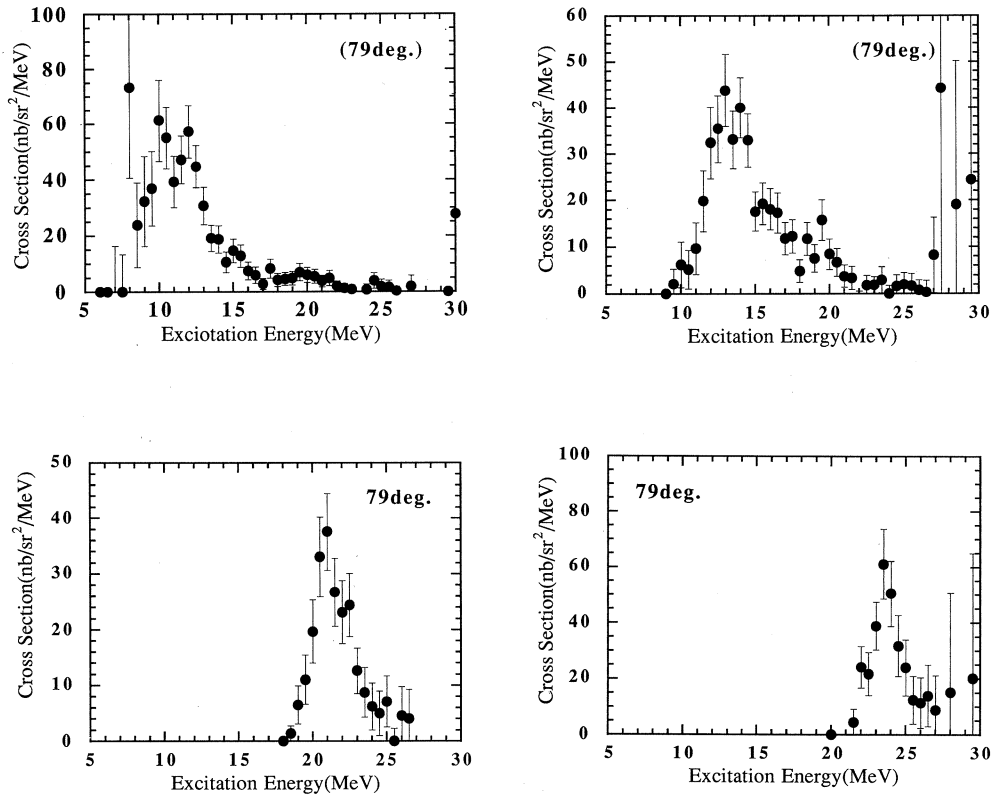


第4図 79°におけるミッシングエネルギースペクトル。

12.7 MeV ( $1^+$ ,  $T=0$ ), 15.1 MeV ( $1^+$ ,  $T=1$ ) に対応している。これらの準位に崩壊していく中性子を各々  $n_0, n_1, n_4, n_5$  と呼ぶ。 $n_2, n_3$  は各々 7.65 MeV ( $0^+$ ,  $T=0$ ), 9.64 MeV ( $3^-$ ,  $T=0$ ) にある離散準位に対応しているが, 今回の実験では有意のピークとして観測されなかった。このミッシングエネルギースペクトルから  $n_0$  ( $^{12}\text{C}$  g. s. への崩壊),  $n_1$  (同4.4 MeV),  $n_4$  (同12.7 MeV),  $n_5$  (同15.1 MeV,  $T=1$ ) のピークを中心から,  $\pm 1.5$  MeV の領域のイベントを取り出し各検出器ごとに  $(e, e' n_0)$ ,  $(e, e' n_1)$ ,  $(e, e' n_4)$ ,  $(e, e' n_5)$  の反応断面積を求めた。79°での各チャンネル毎のスペクトルを第5図に示す。

#### §4. 解 析

Kleppinger ら<sup>11)</sup>は, 巨大共鳴領域における  $(e, e' x)$  反応を共鳴状態を経て粒子を放出する2段階反応として扱い反応断面積理論式を求めた。この理論式を用い電子散乱縦-横干渉成分を含めた興味ある物理量を  $(e, e' n)$  の角分布の実験点に対して  $\chi^2$  fitting の方法を用いて求める。このとき, 四重極子振動までについて考えると, 反応微分断面積は以下のよう



第5図 79°におけるミッシングエネルギースペクトル。  
 a)  $^{13}\text{C}(e, e' n_0)$ , b)  $^{13}\text{C}(e, e' n_1)$ ,  
 c)  $^{13}\text{C}(e, e' n_4)$ , d)  $^{13}\text{C}(e, e' n_5)$ .

に書ける。

$$\begin{aligned}
 d^3\sigma/d\Omega_e \cdot dE_2 \cdot d\Omega_n &= b_0 \times \\
 \{ &V_C \cdot W_C + V_T \cdot W_T + V_{CT} \cdot W_{CT} \cdot \cos\phi_n + V_{TT} \cdot W_{TT} \cdot \cos 2\phi \} \\
 V_C \cdot W_C + V_T \cdot W_T &= \sum_l b_l P_l(\cos\theta_n) \\
 V_{CT} \cdot W_{CT} &= \sum_l c_l P_l^1(\cos\theta_n) \\
 V_{TT} \cdot W_{TT} &= \sum_l d_l P_l^2(\cos\theta_n) \\
 |l-l'| \leq l \leq |l+l'|, \quad l=l' &= 2
 \end{aligned} \tag{2}$$

$P_l(X)$  は Legendre 関数であり,  $P_l^m(X)$  は次のように定義される Legendre 陪関数である。

$$P_l^m(X) \equiv (1-X^2)^{m/2} d^m P_l(X) / dX^m \tag{4}$$



(2)式の添え字Cは縦成分の項で原子核の電荷分布との作用，Tは横成分携帯電流及び磁化電流との作用を表わしている。上記の2つは電子散乱(e, e')の時に現われる項と同じものであるが，CT項は縦成分と横成分の干渉項，TT項は横成分同士の干渉項である。V<sub>C</sub>, V<sub>T</sub>, V<sub>CT</sub>, V<sub>TT</sub>は

$$\begin{aligned}
 V_C &= \Delta^4 / q^4 \\
 V_T &= \Delta^2 / 2 q^2 + \tan^2(\theta_e / 2) \\
 V_{CT} &= \Delta^2 / q^2 \cdot \{ \Delta^2 / q^2 + \tan^2(\theta_e / 2) \}^{1/2} \\
 V_{TT} &= \Delta^2 / 2 q^2 \\
 \Delta^2 &= q^2 - \omega^2
 \end{aligned} \tag{5}$$

で表わされ，入射電子と散乱分子の条件で決まる運動学的係数で原子核の情報を含んでいない。原子核に関する情報はすべて構造関数Wに含まれている。またWは角度変数として $\theta_n$ のみを含み， $\phi_n$ は含んでいない。

よって $b_0, b_1, c_1, d_1$ の10のparameterを用いて表わすことが出来る。実験より求め得る未知の物理量の数は実験点の数で制限され，今回の場合10点に制限され。そこで各種の模型及び仮定を用いて成分の小さいと考えられるparameterを省略する。

今回の実験条件では横成分の割合 $\delta$ は

$$\delta = (V_T / V_C) |T_1(q) / C_1(q)|^2 \approx 3 \sim 25\% \tag{6}$$

である。このことから横成分の割合は縦成分に比して小さいと考えられる。よって，その横同士の干渉項である $V_{TT} \cdot W_{TT}$ はさらに小さいので今回の解析では省略できると考えられる。よって

$$d_1 = 0 \tag{7}$$

となる。さらにE1以外の多重極成分は小さく，縦成分の四重極子振動成分，縦-横干渉項成分のうちの四重極子振動成分及び双極子振動と四重極子振動の干渉成分は小さいと考えられる。

よって

$$b_4 = c_1 = c_3 = c_4 = 0 \tag{8}$$

とした。よって(e, e'n)反応微分断面積 $d\sigma / d\epsilon d\Omega \cdot d\Omega_n$ は5つの物理量，すなわち縦E1成分 $|C_1(q, \omega)|^2$ 縦-横E1干渉成分 $\text{Re}(C_1(q, \omega) \cdot T_1(q, \omega))$ および中性子の放出角分布パラメーター $b_1, b_2, b_3$ で表し得ると仮定し求める物理量の数を制限した。ここで，四重極子振動の情報は双極子振動との干渉成分 $\text{Re}(C_1 \cdot C_2)$ の形で $b_1, b_3$ に含まれている。今回の実験では散乱平面以外での測定は行っていない。そこで $\phi_n = 180^\circ$ とし，fittingには次の試行関数をそれぞれ用いた。

$$d\sigma/d\varepsilon d\Omega_e d\Omega_n = b_0 \cdot \{1 + b_1 \cdot P_1(X) + b_2 \cdot P_2(X) + b_3 \cdot P_3(X) - c_2 \cdot P_2^1(X)\} \quad (9)$$

$$X = \cos \theta_n$$

である。ここで、 $b_0$ ,  $b_1$ ,  $b_2$ ,  $b_3$ および $c_2$ は fitting parameter であり、

$$b_0 = \sigma_M \cdot |C_1(q, \omega)|^2 \cdot (1 + \delta)$$

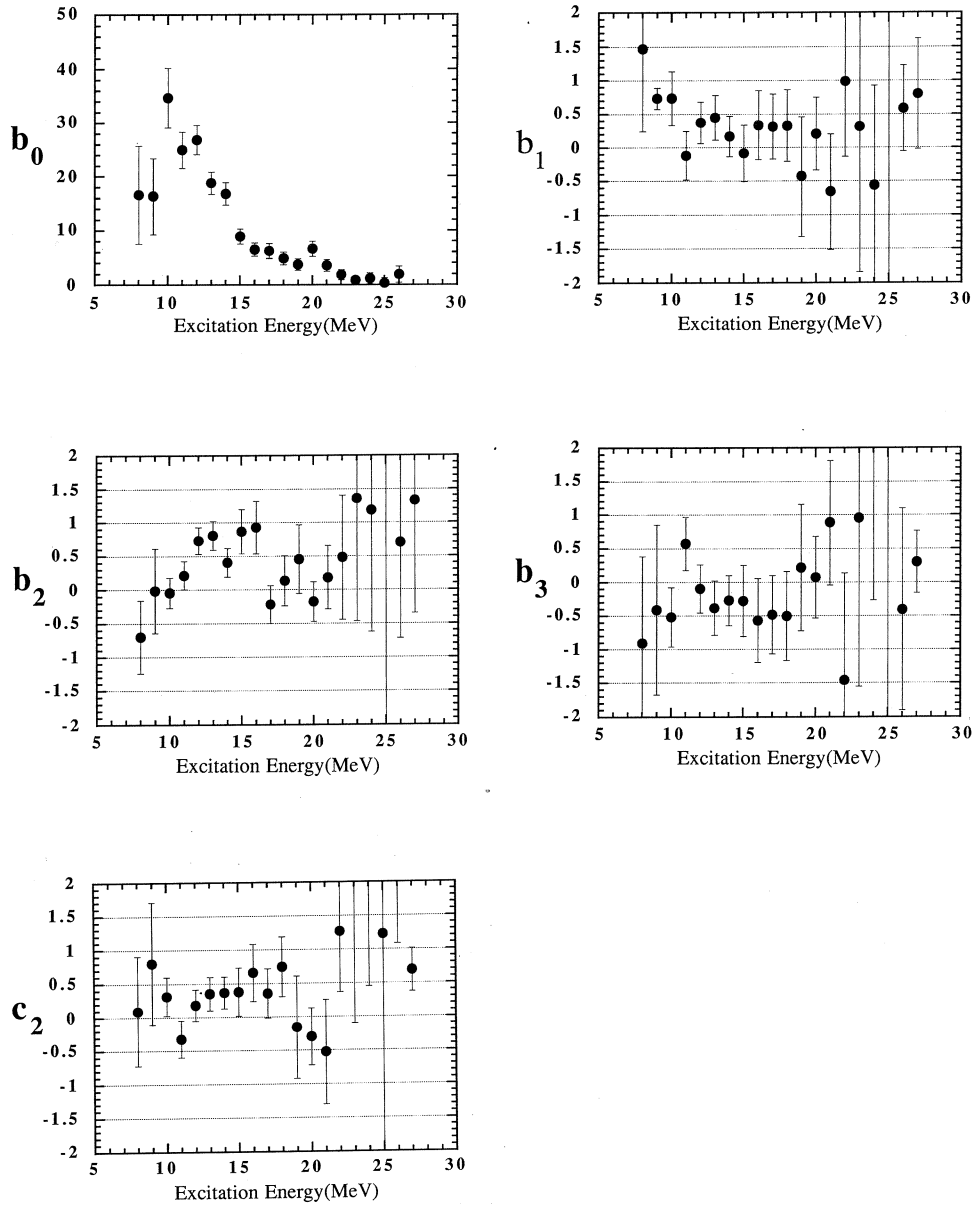
$$c_2 = 2 \sqrt{(1 + \tan^2 \theta_e / 2)} \cdot b_2 \cdot \text{Re}(C_1 \cdot T_1) / |C_1(q, \omega)|^2 \quad (10)$$

である。得られた  $(e, e' n_0)$  と  $(e, e' n_1)$  の fitting parameter を第6図及び第7図に示す。

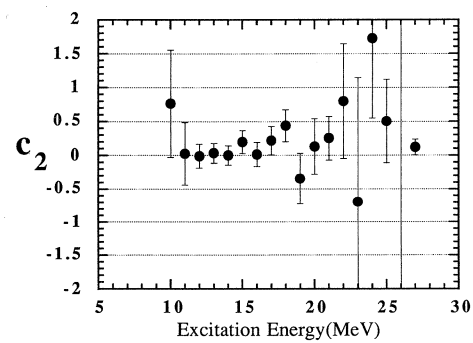
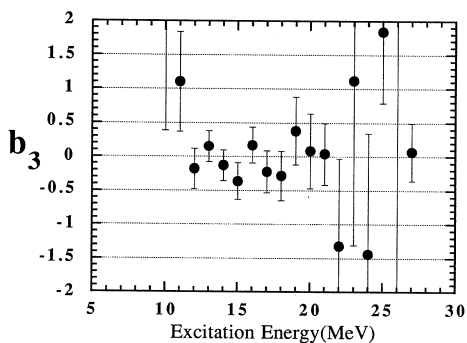
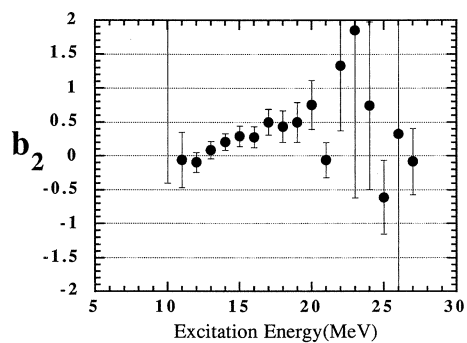
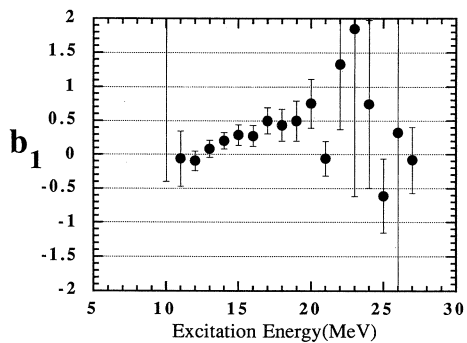
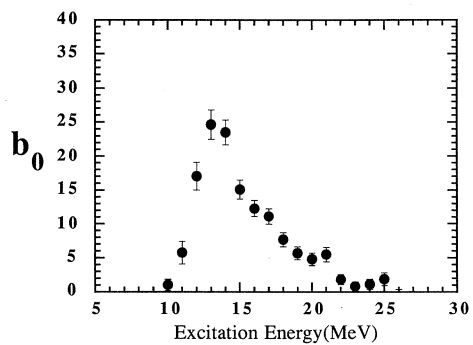
## §5. 議 論

$T_<$ の巨大共鳴のみを選択的に励起することの出来る $^{12}\text{C}$ の $T=0$ 状態へ崩壊を測定する $(e, e' n_0) \sim (e, e' n_4)$ の結果と $T_<$ ,  $T_>$ 共に可能な $(e, e' n_5)$ の結果を見比べると、25MeV付近にある $T_>$ の巨大共鳴の領域からはほとんど $^{12}\text{C}$ の $T=0$ 状態へは崩壊してはおらず、アイスピニング分岐が今回の実験においても確認された。 $T_<$ と $T_>$ GDRのエネルギー差は $(e, e' n_4)$ と $(e, e' n_5)$ のピークのエネルギー差と考えることが出来る。その値は約2.7MeVであり従来の測定結果と一致する。

励起エネルギースペクトルについて光核反応との比較を行う。光核反応による励起をE1のみであると仮定し、 $98^\circ$ における、 $(\gamma, n_{0,1})^0$ のスペクトルを $8\pi/3$ 倍して $(\gamma, n_{\text{total}})^2$ より差し引く。差し引かれたスペクトルは $^{12}\text{C}$ の第2励起状態より高い励起エネルギーに崩壊している $(\gamma, n)$ のスペクトルと考えられる。その結果及び $(e, e' n_4)$ ,  $(e, e' n_5)$ の $a_0$  parameterをGoldhaber-Teller模型を用いて光核反応のスペクトルに変換した断面積を第8図に示す。 $(\gamma, n_0)$ では21.5MeVを中心とした領域に巨大共鳴を観測することができる。巨大共鳴地域においては $(\gamma, n_0)$ に見られる $T_<$ GDRの共鳴と $(\gamma, n_{\text{total}})$ に見られる21MeV付近のピークとはエネルギーが一致していない。よって差し引いたスペクトルには2つのピークが残る。このうち21.1MeV付近の共鳴が $(e, e' n_4)$ , 23.8MeV付近の共鳴が $(e, e' n_5)$ で観測されるピークであると考えられる。このことにより光核反応では巨大共鳴が崩壊準位(0.0MeV, 12.7MeV, 15.1MeV)によって3つの共鳴にsplittingを起こしていることになる。 $(\gamma, n)$ のスペクトルから $(\gamma, n_{0,1})$ を差し引いたスペクトルの2つのピークの中心エネルギーは $(e, e' n_4)$ と $(e, e' n_5)$ のピークの位置によく一致し、断面積の大きさも比較的良好一致を示す。しかし $(\gamma, n_0)$ で見られる21~22MeVのピークが $(e, e' n_0)$ では再



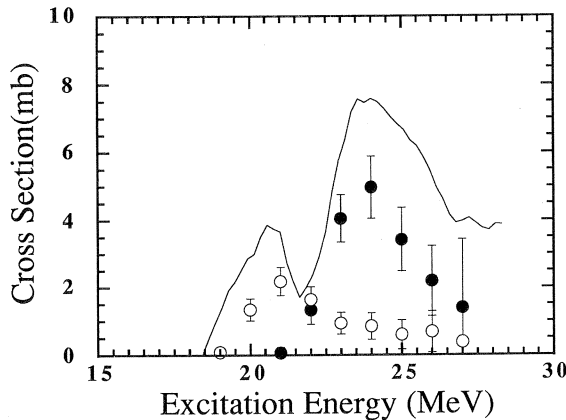
第6図  $^{13}\text{C}$  ( $e, e' n_0$ ) 反応の Legendre fitting parameter。



第7図  $^{13}\text{C}(e, e' n_1)$  反応の Legendre fitting parameter。

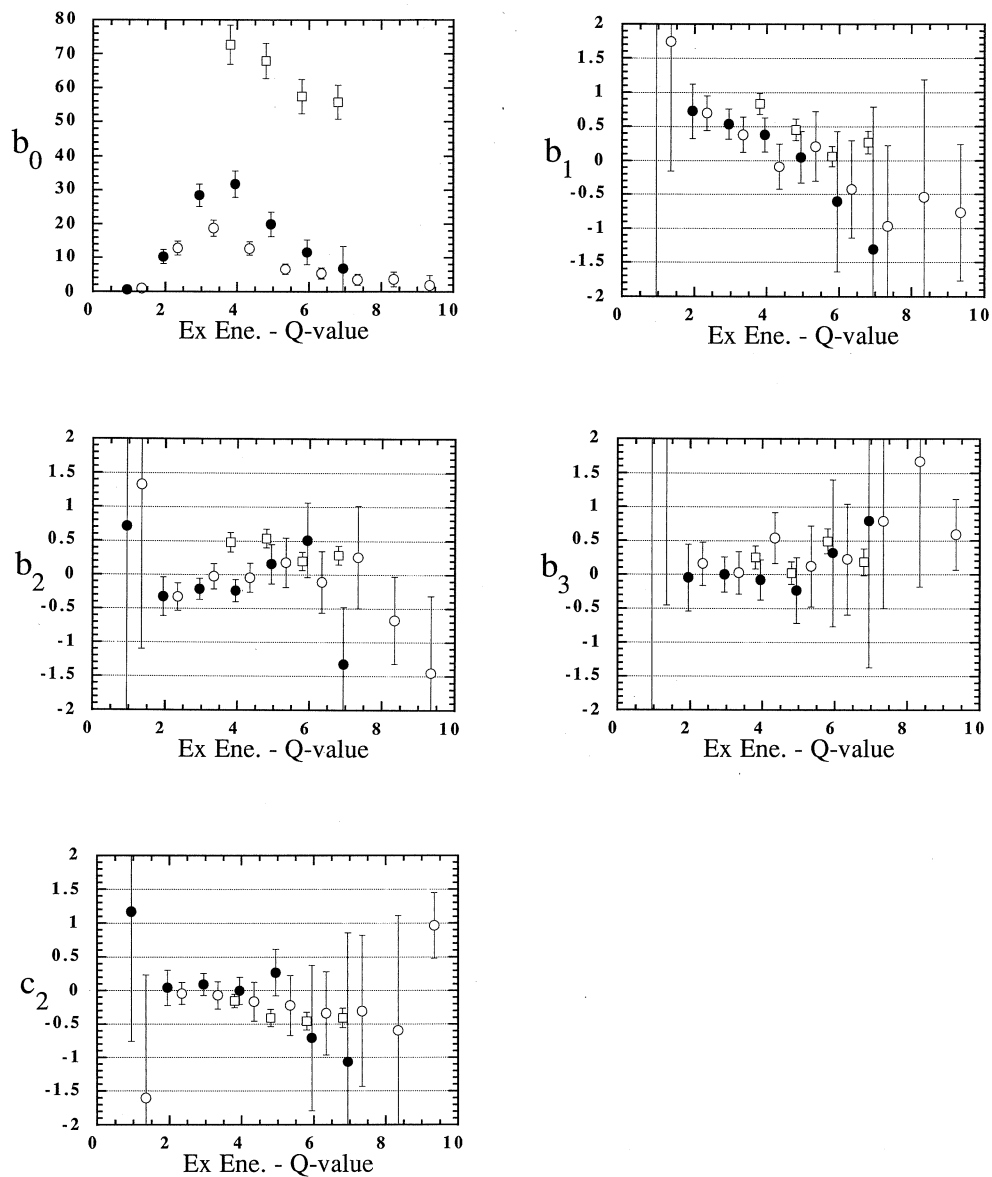
現されない。

$^{12}\text{C}$ の12.7MeV ( $1^+, T=0$ ), 15.11MeV ( $1^+, T=1$ )の準位 ( $1\text{P}_{3/2}^{-1}, 1\text{P}_{1/2}$ )の配位でかなりよく記述できる。これは $^{13}\text{C}$ ( $e, e'n$ )反応によって芯である $^{12}\text{C}$ の $1\text{P}_{3/2}$ に空孔が生じ、 $1\text{P}_{1/2}$ に valence neutronがそのまま残ったという模型を考えることが

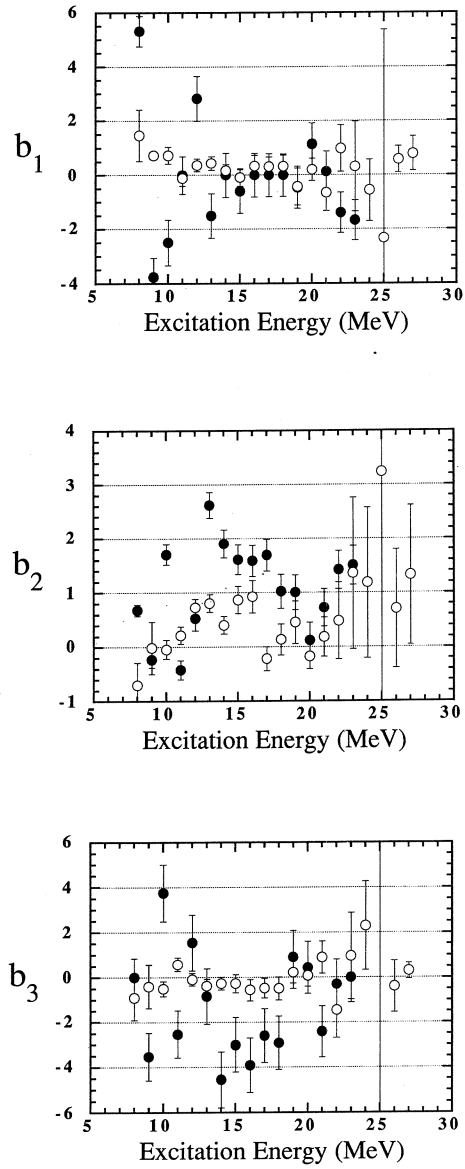


第8図 光核反応及び $^{13}\text{C}(e, e'n_4)$ ,  $(e, e'n_5)$ 反応断面積の比較。  
実線は光核反応, 白丸は $^{13}\text{C}(e, e'n_4)$ , 黒丸は $^{13}\text{C}(e, e'n_5)$ 。

出来る。このとき $^{12}\text{C}$ の巨大共鳴は $T=1$ であり、この $^{12}\text{C}$ のGDR ( $1^-, T=1$ )と valence neutronの結合によって $T=3/2$ と $T=1/2$ の状態を作る。この状態からの中性子の放出を考えると、 $^{12}\text{C}$ のGDRと同様の放出機構であると考えることができ、このとき $^{13}\text{C}(e, e'n)$ 反応においても中性子は $1\text{P}_{3/2}$ からのみ放出されると考えることができる。valence neutronは中性子放出後も $1\text{P}_{1/2}$ に残るため終状態は( $1\text{P}_{3/2}^{-1}, 1\text{P}_{1/2}$ )となり、 $^{12}\text{C}$ の12.7MeV, 15.1MeVの配位と同じ状態となる。よって $^{13}\text{C}(e, e'n_4)$ ,  $(e, e'n_5)$ の角分布は $^{12}\text{C}(e, e'n_0)$ の角分布と同様の傾向を示すと考えられる。 $^{13}\text{C}(e, e'n_4)$ ,  $(e, e'n_5)$ 及び $^{12}\text{C}(e, e'n)$ のLegendre fitting parameterを第9図に示す。 $^{12}\text{C}(e, e'n)$ は7点で測定を行った<sup>11)</sup>。 $^{12}\text{C}(e, e'n)$ はそのほとんどが $^{11}\text{C}$ の基底状態に崩壊するので $(e, e'n)$ の断面積を $(e, e'n_0)$ の断面積と考えると、この3つの反応のfitting parameterは非常によい一致を示していることが分かる。また全断面積を反映する $b_0$ の値は $(e, e'n_4)$ と $(e, e'n_5)$ の和が $^{12}\text{C}(e, e'n)$ にほぼ近い値を示す。これは $^{12}\text{C}$ のGDRの反応断面積を $T_>$ ,  $T_<$ のGDRが分けられていると考えられる。 $T_>$ GDRと $T_<$ GDRの強度比を $(e, e'n_5)$ と $(e, e'n_4)$ の強度比と仮定するならば、 $(e, e'n_4) : (e, e'n_5) = 1 : 1.82 \pm 0.21$ であった。これは殻模型を用いて計算



第9図  $^{12}\text{C}(e, e' n)$  及び  $^{13}\text{C}(e, e' n_4)$ ,  $(e, e' n_5)$  反応のLegendre fitting parameter。横軸は各チャンネルの閾値からのエネルギー。白丸は $^{13}\text{C}(e, e' n_4)$ , 黒丸は $^{13}\text{C}(e, e' n_5)$ , 白角は $^{12}\text{C}(e, e' n_0)$ 。



第10図  $^{13}\text{C}(\gamma, n_0)$  及び  $^{13}\text{C}(e, e' n_0)$  反応の Legendre fitting parameter の比較。黒丸が  $^{13}\text{C}(e, e' n_0)$ ，白丸が  $^{13}\text{C}(\gamma, n_0)$ 。

された値 ( $1 : 1.902$ )<sup>13)</sup> によい一致を示す。

ピグミー共鳴は  $(e, e' n_0)$ ,  $(e, e' n_1)$  のスペクトルにのみ見ることが出来る。 $(e, e' n_0)$  は  $12\text{MeV}$  を中心に幅約  $4\text{MeV}$ ,  $(e, e' n_1)$  では  $14\text{MeV}$  を中心に幅約  $4\text{MeV}$  のピークがみられ  $(\gamma, n)$  の結果と一致している。また, G-T 模型及び Sigert 定理が成り立つとすると  $b_1, b_2, b_3$  は光核反応角分布解析の際求められる Legendre 展開係数  $a_1, a_2, a_3$  と次の関係にある。

$$\begin{aligned} a_1 &= (3/4) \cdot (\omega/q) \cdot b_1 \\ a_2 &= - (1/2) \cdot b_2 \\ a_3 &= - (1/2) \cdot (\omega/q) \cdot b_3 \end{aligned} \quad (11)$$

この関係を用いて,  $(\gamma, n_0)$ <sup>6)</sup> の Legendre fitting parameter との比較を行ったのが第10図である。

## §6. 結 論

$(e, e' n_0)$  では  $(\gamma, n_0)$  で顕著に表われていた  $T_{<}$  巨大共鳴からの崩壊中性子がほとんど見られず, 光核反応とは明かな違いがみられた。

ピグミー共鳴領域の  $(e, e' n_0)$  反応は非常に大きな強度として観測できる。しかし, この領域においては仮想光子の縦成分が横成分に比してかなり大きく G-T 模型を用いた変換では  $(\gamma, n)$  の角分布を再現できなかった。

$T_{>}$  巨大共鳴からの中性子は  $^{12}\text{C}$  の  $15.1\text{MeV}$  に,  $T_{<}$  巨大共鳴からの中性子は  $12.7\text{MeV}$  に殆ど崩壊し, その断面積の比は  $T_{<} : T_{>} = 1 : 1.82 \pm 0.21$  であった。

$^{13}\text{C}(e, e' n_4)$  及び  $^{13}\text{C}(e, e' n_5)$  を  $^{12}\text{C}(e, e' n_0)$  のデータと比較することにより,  $^{13}\text{C}$  の巨大共鳴からの崩壊には valence neutron の寄与は小さく, 芯である  $^{12}\text{C}$  からの崩壊中性子であると考えることが出来る。



## 参 考 文 献

- 1) B. C. Cook : Phys. Rev. **106** (1957) 300.
- 2) J. W. Jury, B. L. Berman, D. D. Faul, P. Meyer, K. G. McNiell and J. G. Woodworth : Phys. Rev. **C19** (1979) 1684.
- 3) K. Fukuda : Nucl. Phys. **A156** (1970) 10.
- 4) R. Kock and H. H. Thies : Nucl. Phys. **A272** (1976) 296.
- 5) J. G. Woodworth, K. G. McNiell, J. W. Jury, P. D. Georgopoulos and R. G. John : Can. J. Phys. **55** (1977) 1074.
- 6) J. G. Woodworth, K. G. McNiell, J. W. Jury, P. D. Georgopoulos and R. G. Johnson : Nucl. Phys. **A327** (1979) 53.
- 7) J. C. Bergstrom, H. Crannell, F. J. Kline, J. T. O' Brien, J. W. Lightbody, Jr. and S. P. Fivozinsky : Phys. Rev. **C4** (1971) 1514.
- 8) D. Zubanov, R. A. Sutton and M. N. Thompson : Phys. Rev. **C27** (1983) 1957.
- 9) 菅原康弘, 鈴木伸介, 竹下邦和, 前田和茂, D. McLean, 松山日出人, 山崎寛仁 : 核理研研究報告**22** (1989) 221 ; 山崎寛仁 : 修士論文 東北大学 1990.
- 10) 高桑智恵, 斎藤梯二郎, 鈴木伸介, 高久圭二, 藤平 力, 中川武美, 阿部 健 : 核理研研究報告**23** (1990) 172.
- 11) W. K. Kleppinger and J. D. Walecka : Ann. Phys. **146** (1983) 349.
- 12) 高桑智恵 : 修士論文 東北大学 1991.
- 13) B. Goulard and S. Fallieros : Can. J. Phys. **45** (1967) 3221.

## $^{40}\text{Ca}(e, e' n)$ 反応による巨大共鳴の研究

核理研, 理学部物理\*, 教養部\*\*

高桑智恵・斎藤悌二郎・鈴木伸介

高久圭二・藤平 力\*・中川武美\*

阿部 健\*\*

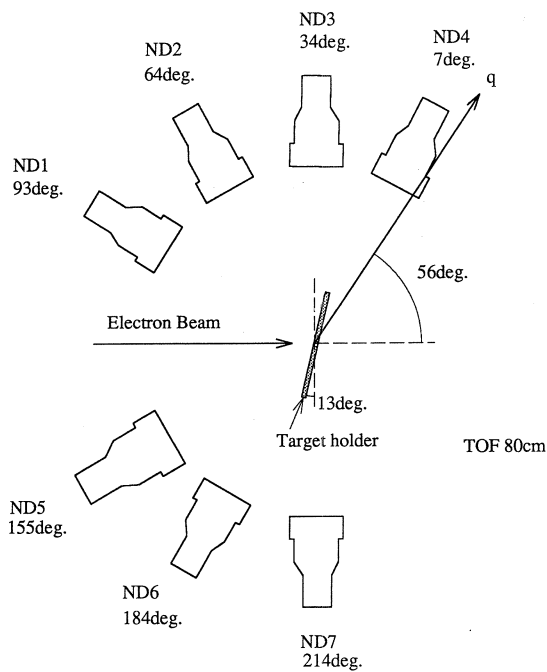
### §1. はじめに

前回の核理研研究報告<sup>1)</sup>では, 巨大共鳴における $^{40}\text{Ca}(e, e' n)$ の実験を行ない, 中重核による $(e, e' n)$ 実験が可能であることを報告した。前回では, 実験条件下で中性子検出器の検出効率を求め, これを用いて $^{40}\text{Ca}(e, e' n)$ 反応のミッシングエネルギー Spektrum を求めたことまで報告した。今回はミッシングエネルギー Spektrum を用いて $n_0, n_1$ の分離を行ない各々の角分布を求め,  $^{40}\text{Ca}(e, e' n)$ 反応<sup>2)</sup>との比較,  $^{40}\text{Ca}(\gamma, n)^{39}\text{Ca}$ 反応<sup>3)</sup>との比較を行った。

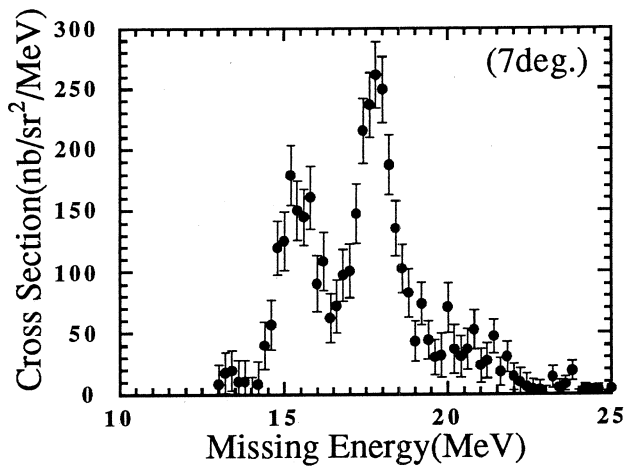
### §2. 実験装置及び解析方法

実験は東北大学理学部附属原子核理学研究施設の電子線型加速器及び, パルスビームストレッチャーからの129MeV連続電子線を用いて行なった。散乱電子角度 $\theta_e=30^\circ$ , 運動量移行 $q_{\text{eff}}=0.35\text{fm}^{-1}$ , 励起エネルギー $E_x=18\sim 26\text{MeV}$ に対して平均ビーム電流は40nAで実験を行なった。標的からの散乱電子は二重集束型磁気スペクトロメータ(LDM)で運動量分析されたのち, 焦点面に設置された垂直型ドリフトチェンバー(VDC), 三層のプラスチックシンチレータからなる位置検出器によって検出される。一方, 標的から放出された中性子は, 散乱槽の周りに距離80cmで設置された7台の中性子検出器によって検出される(第1図)。標的は, $^{nat}\text{Ca}$ ( $^{40}\text{Ca}$ の存在比 96.6%)で, 厚さは $95.2\text{mg}/\text{cm}^2$ のものを使用した。詳細は以前の核理研研究報告<sup>1)</sup>を参照されたい。

解析では検出閾値は $^{137}\text{Cs}$ のコンプトンエッジ $0.477\text{MeV}$ で,  $\gamma$ 線と中性子の事象はPSDを用いて分離した。第2図にND4の真の中性子事象によるミッシングエネルギー Spektrum を示す。ミッシングエネルギーは, 残留核の励起エネルギーに中性子放出閾値を加えたエネルギーである。この Spektrum に見られる各々のピークは残留核 $^{39}\text{Ca}$ のエネルギー準位に対応している。15.6MeVのピークが残留核 $^{39}\text{Ca}$ の基底状態に相当している。残留核 $^{39}\text{Ca}$ のエネルギー準位は基底状態と第1励起状態は2.47MeV離れているが, 第1励起状態と第2励起状態, 第

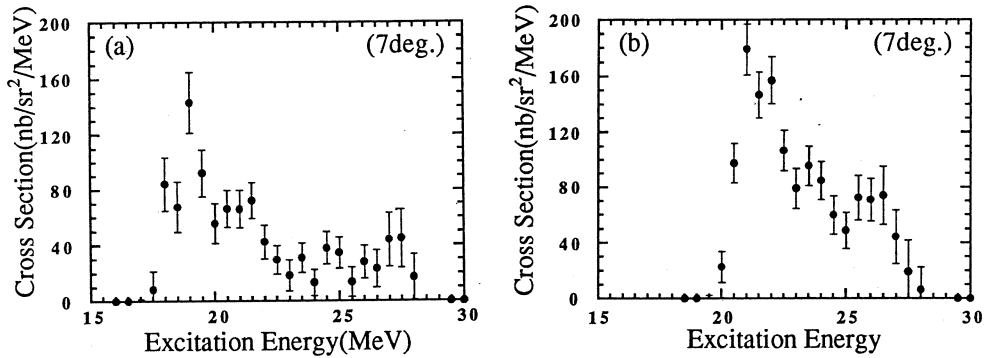


第1図 実験時の中性子検出器の配置。  
TOF距離80cm。ND1～ND6はサイズ $\phi 18\text{cm} \times 10\text{cm}$ ，立体角39.8msr。ND7はサイズ $\phi 20\text{cm} \times 10\text{cm}$ ，立体角49.1msr。



第2図  $^{40}\text{Ca}$  のミッシングエネルギースペクトル (ND4)。

3励起状態は準位密度が高く，各々のピークを分離することが困難である。したがって，18 MeV付近のピークは $n_1+n_2+n_3$ によるものと考えられる。しかし，配位，スペクトルの半値



第3図 (a)  $^{40}\text{Ca}(e, e' n_0)$ 反応断面積 (ND4),  
(b)  $^{40}\text{Ca}(e, e' n_1)$ 反応断面積 (ND4)。

幅等から考えて  $n_1$  の事象が主であると考えられるので,  $n_1+n_2+n_3$  の事象を以下まとめて  $n_1$  とする。

このミッシングエネルギースペクトルを用いて  $n_0$  ( $^{39}\text{Ca}_{g.s.}$  への崩壊),  $n_1$  (同 2.47MeV) のピークを中心から,  $\pm 1.23\text{MeV}$  の領域の事象を取り出し各検出器毎に  $(e, e' n_0)$ ,  $(e, e' n_1)$  の反応断面積を求めた。ND4 についての  $(e, e' n_0)$  と  $(e, e' n_1)$  の反応断面積を第3図に示す。各中性子検出器の反応断面積より各々の励起エネルギー毎の断面積を求め, 角分布を求めた。角分布は統計によるばらつきを少なくするため, 中心エネルギーから  $\pm 0.5\text{MeV}$  分, つまり  $1\text{MeV}$  の中の微分断面積を積分して, それぞれ  $(e, e' n_0)$ ,  $(e, e' n_1)$  の巨大共鳴について求めた。

$(e, e' n)$  反応断面積は Kleppinger によれば以下の様に示される<sup>4)</sup>。

$$\begin{aligned} d^3\sigma/d\Omega_e \cdot dE_2 \cdot d\Omega_n &= \sigma_M \cdot p_n \cdot E_n / 2 \\ &\times \{V_L R_L + V_T R_T + V_{LT} R_{LT} \cos \phi_n + V_{TT} R_{TT} \cos 2\phi_n\} \end{aligned} \quad (1)$$

ここで,

$$\begin{aligned} \sigma_M &= \{\alpha^2 \cos^2(\theta/2)\} / \{4E_i^2 \sin^4(\theta/2)\} \\ V_L &= \Delta^4 / q^4 \\ V_T &= \Delta^2 / (2q^2) + \tan^2(\theta_e/2) \\ V_{LT} &= \Delta^2 / q^2 \cdot \{\Delta^2 / q^2 + \tan^2(\theta_e/2)\}^{1/2} \\ V_{TT} &= \Delta^2 / (2q^2) \\ \Delta^2 &= q^2 - \omega^2 \end{aligned} \quad (2)$$

今回の実験では散乱電子角  $\theta_e = 30^\circ$  で  $q_{\text{eff}} = 0.35\text{fm}^{-1}$  であった。この付近の運動量移行量では電子散乱の形状因子から励起状態は E1 (縦励起 T1 と横励起 C1) が主であると考えられる<sup>5)</sup>。

また, Goldhaber-Teller 模型<sup>6,7)</sup>からの次の式が成り立つ。

$$T1(q) = -\sqrt{2} (\omega/q) C1(q) \quad (3)$$

この関係式から  $\omega=21\text{MeV}$ ,  $q_{\text{eff}}=0.35\text{fm}^{-1}$  では  $T1(q) / C1(q) = -0.43$  となる。このとき反応断面積における縦成分の割合は以下の式で定義できる。

$$\delta = (V_T/V_L) \cdot [T1(q) / C1(q)]^2 \quad (4)$$

ここで,  $C1$ ,  $C2$ ,  $T1$  は遷移行列を示し, 以下の様に表わせる。

$$\begin{aligned} C1(q) &= \langle 1^- \| M_1(q) \| 0^+ \rangle \\ C2(q) &= \langle 2^+ \| M_2(q) \| 0^+ \rangle \\ T1(q) &= \langle 1^- \| T_1^{\text{el}}(q) \| 0^+ \rangle \end{aligned} \quad (5)$$

ここで  $M_i(q)$ ,  $T_1^{\text{el}}(q)$  は, クローン多重極演算子, 横電気多重極演算子である。 $R_L$  は  $|C1|^2$  と  $C1^* \cdot C2$  からなる縦応答関数を示し,  $R_T$  は  $|T1|^2$  の横応答関数,  $R_{LT}$  は  $C1^* \cdot T1$  と  $C2^* \cdot T1$  の縦-横干渉項,  $R_{TT}$  は  $|T1|^2$  の縦-縦干渉項を示している。(2), (3)式を使って(4)式について解くと  $\omega=21\text{MeV}$ ,  $q_{\text{eff}}=0.35\text{fm}^{-1}$  では  $\delta=0.118$  であり, 縦成分に比べ横成分は12%程度であった。

角分布を求める際は, 縦成分, 横成分と縦-横干渉項のみを考慮し, 横-横干渉項は無視した。また, 電子散乱の形状因子から  $q_{\text{eff}}=0.35\text{fm}^{-1}$  では E1 励起が支配的で, 次に E2 (縦励起 C2) なので解析では E1 と E1-E2 の干渉項の寄与を考慮に入れた。

一般に(1)式で示される応答関数をルジャンドル関数で近似すると次のようになる。

$$V_L R_L + V_T R_T = A_0 [1 + b_1 P_1(X_n) + b_2 P_2(X_n) + b_3 P_3(X_n)], \quad (6-1)$$

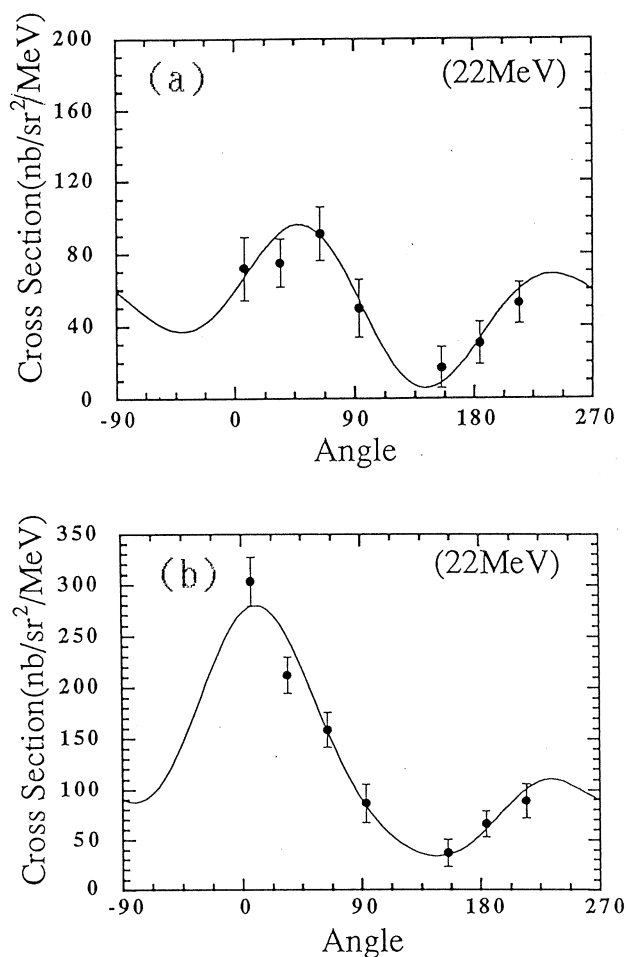
$$V_{LT} R_{LT} = C_2 [c_1 P_1(X_n) + c_2 P_2(X_n) + c_3 P_3(X_n)], \quad (6-2)$$

$$V_{TT} R_{TT} = D_2 P_2^2(X_n), \quad (6-3)$$

$$X_n = \cos \theta_n \quad (6-4)$$

今回の測定点は7点と少ないため, あらかじめ幾つか仮定をたてて角分布のフィッティングパラメータを制限しておく必要がある。まず一般に  $V_{TT} R_{TT}$  は  $V_T R_T$  に比べ小さいので,  $V_{TT} R_{TT} \cos(2\phi_n)$  の項は解析では無視している。また, (6-2)式は縦成分と横成分の干渉項であるが, 第1項と第3項は更に E1 と E2 の干渉を表しており, これらの係数は縦-横干渉項が主である第2項に比べ小さいとして解析では無視した。以上の仮定を行なうとフィッティングパラメータは  $A_0$ ,  $b_1$ ,  $b_2$ ,  $b_3$ ,  $C_2$  の5点となる。

角分布のすべてのメータは  $\chi^2$  フィッティングで求められる。求めたパラメータを用いて  $(e, e'_{n0}), (e, e'_{n1})$  の角分布を第4図に示す。



第4図 (a)励起エネルギー22MeVにおける $^{40}\text{Ca}(e, e' n_0)$ 角分布,  
(b)励起エネルギー22MeVにおける $^{40}\text{Ca}(e, e' n_1)$ 角分布。

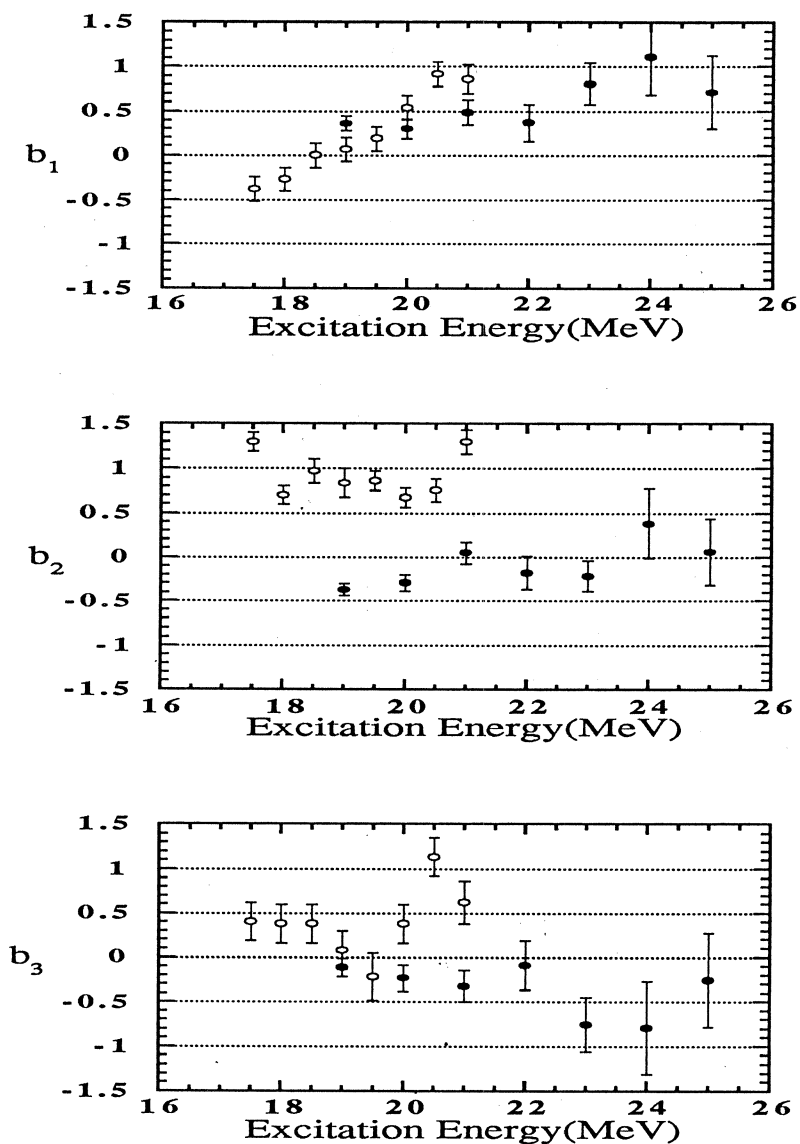
### §3. 解析結果及び議論

#### 3.1 $(e, e' n_0)$ 反応と $(e, e' p)$ 反応との比較

$(e, e' n_0)$  角分布の  $\chi^2$  フィッティングした  $b_1, b_2, b_3$  パラメータを  $^{40}\text{Ca}(e, e' n_0)$  と比較すると、第5図に示す様になる。

まず E1, E2 成分について考察する。 $(e, e' n_0)$  と  $(e, e' p_0)$  を比較すると、E1, E2 を示す  $b_2$  パラメータがかなり異なることが分かる。 $(e, e' n_0)$  の  $b_2$  は平均すると  $-0.08$  であるが  $(e, e' n_0), (e, e' p_0)$  で異なることがわかる。

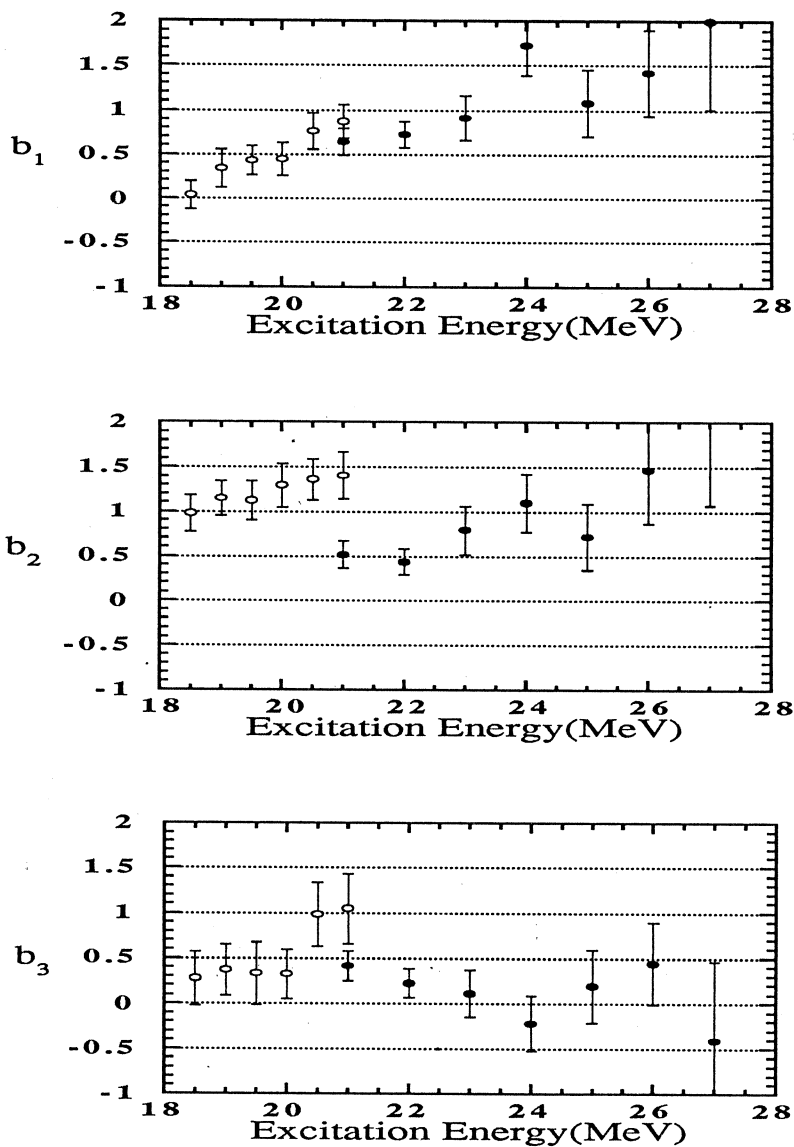
$b_1, b_3$  は 0 でないことより、E1 - E2 干渉項が確認された。 $(e, e' p_0)$  と比較すると E1 - E2 干渉項を示す  $b_1, b_3$  は傾向は似ているが、励起エネルギーが高くなってくると  $b_3$  がやや



第5図  $^{40}\text{Ca}(e, e' n_0)$ と $(e, e' p_0)$ のルジャンドル関数パラメータの比較。  
 黒丸： $(e, e' n_0)$ 反応の実験点，白丸： $(e, e' p_0)$ 反応の実験点。

合わなくなっている。

$(e, e' n_1)$ について $\chi^2$ フィッティングで求めたパラメータと第6図に示す。 $(e, e' p_1)$ も検出器の分解能から $p_1, p_2, p_3$ の分離ができず、 $p_1, p_2, p_3$ すべての事象についての角分布としている。測定領域が異なるためデータの重なりが21MeVでの1点しかないが各パラメータの傾向を比較すると、 $(e, e' n_1)$ と $(e, e' p_1)$ 共に $b_1$ は励起エネルギーが高くなると増加する傾向



第6図  $^{40}\text{Ca}$   $(e, e' n_1)$  と  $(e, e' p_1)$  のルジャンドル関数のパラメータの比較。  
 黒丸： $(e, e' n_1)$ 反応の実験点，白丸： $(e, e' p_1)$ 反応の実験点。

にある。また、 $b_3$ は双方ともに0~0.5近傍である。 $b_2$ が $(e, e' n_1)$ と $(e, e' p_1)$ で大きく異なり、21MeVでは $(e, e' n_1)$ が0.5であるのに対し、 $(e, e' p_1)$ では1.4という大きい値を示している。



### 3.2 光核反応との比較

( $e, e' n_0$ ) と ( $\gamma, n_0$ ) の角分布の比較について議論を進める。運動量移行  $q = 0.35 \text{fm}^{-1}$  で行なった ( $e, e' n_0$ ) の実験値を光子点における値に換算して ( $\gamma, n_0$ ) と比較を行なう。Kleppinger と Walecka によれば, PWBA に基づく共鳴近似を用いた公式を応用すると, 縦, 横, 縦-横の応答関数は以下の様に定義できる。

$$\begin{aligned} R_L &= D \cdot |C1(q)|^2 \cdot [1 + d_1 P_1(X_n) + d_2 P_2(X_n) + d_3 P_3(X_n)] \\ R_T &= D \cdot |T1(q)|^2 \cdot [1 - (1/2) d_2 P_2(X_n)] \\ R_{LT} &= D \cdot (d_2/\sqrt{2}) R_c (C1(q))^* \cdot T1(q) \cdot [C_1 P_1^{\frac{1}{2}}(X_n) + P_2^{\frac{1}{2}}(X_n) \\ &\quad + C_3 P_3^{\frac{1}{2}}(X_n)] \\ D &= B_r / Z^2 \end{aligned} \quad (7)$$

ここで,  $C_1, C_3$  は今回考慮していない。また,  $B_r$  は  $n_0$  や  $n_1$  の分岐比,  $C1, C2, T1$  は(5)式で表される遷移行列を示す。(6), (7)式の係数の関係は以下の様に置くことができる。

$$\begin{aligned} A_0 &= D \cdot [V_L |C1(q)|^2 + V_T |T1(q)|^2] \\ &= D \cdot V_L |C1(q)|^2 (1 + \delta) \\ b_1 &= d_1 / (1 + \delta) \\ b_2 &= d_2 [1 - (1/2) \delta] / (1 + \delta) \\ b_3 &= d_3 / (1 + \delta) \\ C_2 &= D \cdot V_{LT} \sqrt{(1/2)} d_3 R_c (C1(q))^* \cdot T1(q) \end{aligned} \quad (8)$$

ここで  $\delta$  は(4)式で定義される。また, 干渉項係数  $C_1, C_3$  は遷移行列要素で, 縦 E1 - 横 E1 干渉成分  $C1^* \cdot T1$  と縦 E1 干渉成分  $C2 \cdot T1$  の関数で表される。干渉項成分と干渉項成分の積のため小さいと考え解析では無視している。 $^{40}\text{Ca}(e, e' p_0)$  反応ではこれらの効果も考慮して各パラメータを求めているが, その結果, 干渉項係数  $C_1, C_3$  はほとんど 0 であった。

一方光核反応での反応断面積は以下の式で表される。

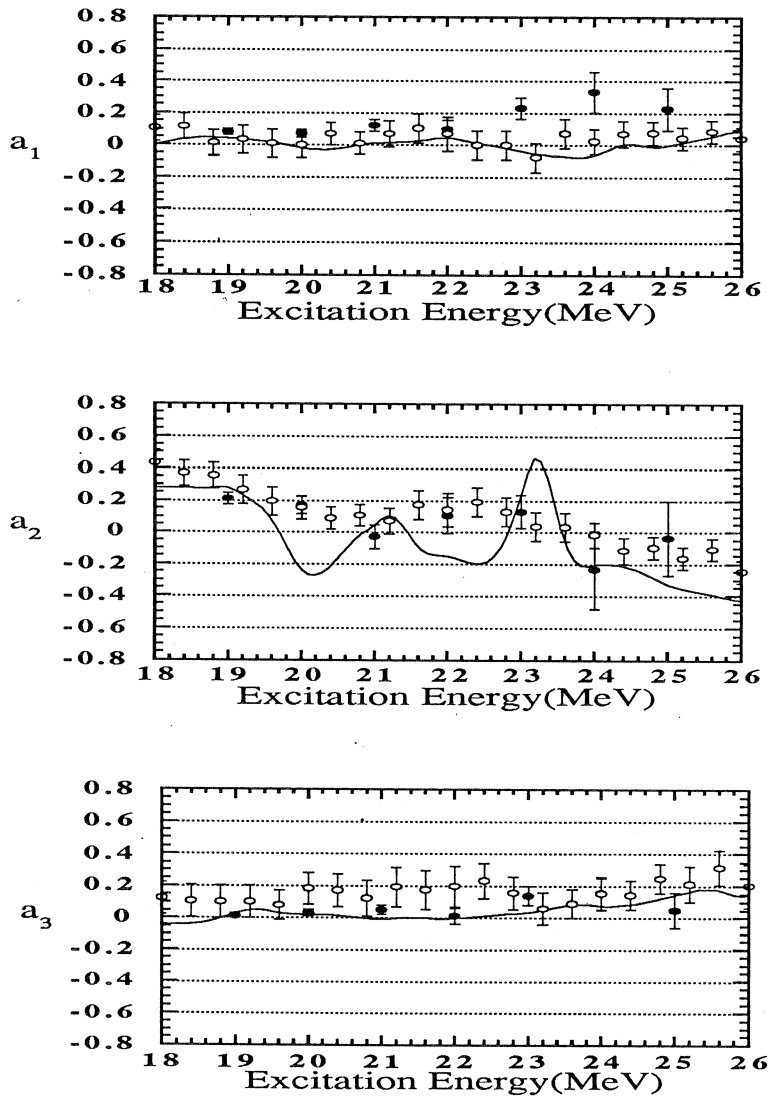
$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = \frac{2\pi\alpha}{\omega} 3 B_r |T1(\omega)|^2 \cdot [1 + a_1 P_1(X_n) + a_2 P_2(X_n) + a_3 P_3(X_n)] \quad (9)$$

このとき  $\chi^2$  フィッティングで求めた。( $e, e' n$ ) 反応の角分布の係  $b_i$  ( $i=1, 2, 3$ ) は, 次の手続を行なって光核反応の角分布の係数  $a_i$  と比較することができる。

まず, 光子点において Siegert 定理<sup>8)</sup> が成り立ち, 巨大共鳴の縦成分の形状因子の  $q$  依存性が  $j_i(qR)$  であると仮定すると<sup>9)</sup> 角分布の係数の関係は以下の様になる。

$$\begin{aligned}
 d_1 &= (4/3)(q/\omega)a_1 \\
 d_2 &= -2a_2 \\
 d_3 &= -2(q/\omega)a_1
 \end{aligned}
 \tag{10}$$

この様な手順を踏んで  $\chi^2$  フィッティングで求めたパラメータ  $b_1, b_2, b_3$  を光核反応の角分布の係数  $a_1, a_2, a_3$  に変換することができる。以上の様にして求めた各パラメータと  $(\gamma, n_0)$  の角分布のパラメータを第7図に示す。



第7図  $^{40}\text{Ca}$  ( $e, e' n_0$ ) と  $(\gamma, n_0)$  のルジャンドル関数パラメータの比較。  
黒丸: ( $e, e' n_0$ ) 反応の実験点, 白丸:  $(\gamma, n_0)$  反応の実験点。

( $e, e' n_0$ ) と ( $e, e' p_0$ ) では異なった値を示した E1, E2 成分を示す  $a_2$  は、励起エネルギー 19MeV の 0.2 から始まって徐々に小さくなり、励起エネルギー 24, 25MeV では負の値をとっている。これは ( $\gamma, n_0$ ) でも同じ傾向を示している。また  $a_1, a_3$  も ( $e, e' n_0$ ) と ( $\gamma, n_0$ ) で同様の傾向を示しており、E1 - E2 干渉項も光核反応により一致を示している。また、Cavinato らの RPA (SK 3) 計算結果<sup>10)</sup> と比較すると E1 - E2 干渉項を示す  $a_1, a_3$  は実験値とよい一致を示しているが、計算結果の  $a_2$  に見られるような構造は実験では見い出せなかった。Cavinato らによれば、1 粒子 - 1 空孔状態についての RPA (SK 3) 計算結果から、励起エネルギー 19.5MeV, 20.3MeV, 22.2MeV について  $T = 1$ , E1 の巨大共鳴のピークが存在する。 $a_2$  の構造はこれらのピークを反映しているためである。しかし、1 粒子 - 1 空孔状態の fragmentation や、2 粒子 - 2 空孔状態のようなもっと複雑な配位を考慮することによって計算結果は実験値をよく示すようになると言われている。

Tanaka らは同様な手続きをとって ( $e, e' p_0$ ) と ( $\gamma, p_0$ ) 反応の逆反応である ( $p, \gamma_0$ ) 反応の角分布のルジャンドル関数の各パラメータを比較している<sup>2)</sup>。Tanaka らの結果からも ( $e, e' p_0$ ) と ( $p, \gamma_0$ ) とでは同じ傾向を示しており、違いは見出されなかった。以上より、今回の実験条件下では光核反応と ( $e, e' x$ ) 同時計数実験による違いはほとんどないことが分かった。また、Cavinato らにより、( $\gamma, n_0$ ) と ( $\gamma, p_0$ ) の  $a_2$  パラメータが 22MeV 付近まで異なることが示唆されている。従って、( $e, e' n_0$ ) と ( $e, e' p_0$ ) の  $b_2$  パラメータの違いは巨大共鳴崩壊に伴う放出粒子の電荷の違いが現われているものと考えられる。

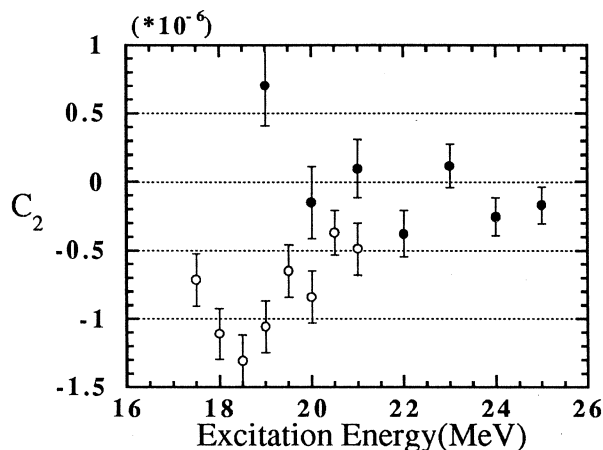
( $e, e' n_0$ ), ( $e, e' p_0$ ) 反応の角分布の E1 - E2 干渉項パラメータ  $a_1, a_3$  を比較することにより E2 成分がアイソスカラーかアイソベクターかを判断することが出来る。Marangoni らによれば、 $a_1, a_3$  の符号が ( $\gamma, n_0$ ) と ( $\gamma, p_0$ ) で異なればアイソスカラー E2 が、符号が同じならばアイソベクター E2 の存在が示唆される<sup>11)</sup>。Cavinato らの計算によれば、17~19 MeV において ( $\gamma, n_0$ ) と ( $\gamma, p_0$ ) で  $a_1, a_3$  の符号が異符号をとっており、アイソスカラー E2 の存在が予想されていた。今回の ( $e, e' n_0$ ) と Tanaka らの ( $e, e' p_0$ ) の結果を比較すると、( $e, e' n_0$ ) では  $b_1$  は正、 $b_3$  は負の値を示しており、( $e, e' p_0$ ) では  $b_1$  は 19MeV まで負の値、19MeV 以上は正の値、 $b_3$  は正の値を示している。19MeV 以下において  $b_1, b_3$  (光核反応での  $a_1, a_3$  に相当) が異符号をとる傾向にあり、アイソスカラー E2 が存在すると考えられる。また、計算では 25MeV にアイソベクター E2 の存在が予想されている<sup>10)</sup>。

### 3.3 縦-横干渉項

縦-横干渉項  $\text{Re} \{C1(q)^* \cdot T1(q)\}$  について考える。この量は電子散乱による同時計

数実験に特徴的な量であり通常の電子散乱実験と比べて縦遷移成分，横遷移成分の位相差を知ることができる。

第8図に  $(e, e' n_0)$  の縦成分換算行列要素と横成分換算行列要素との位相差を示す  $C_2$  の値を示す。 $(e, e' n)$  反応では角分布を求めるにあたって縦-横干渉項のみを考慮し，縦-横



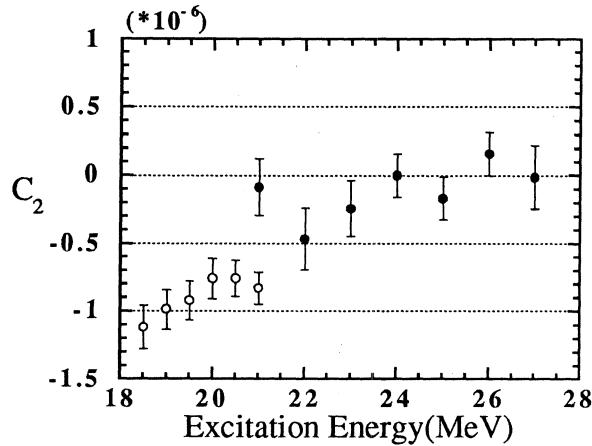
第8図  $^{40}\text{Ca}$   $(e, e' n_0)$  と  $(e, e' p_0)$  の縦-横干渉項の比較。  
黒丸： $(e, e' n_0)$  反応実験点，白丸： $(e, e' p_0)$  反応の実験点。

干渉項の中の E1 と E2 の干渉項は無視しているのに対して， $(e, e' p)$  反応ではこれらの項まで考慮して各パラメータを求めている。このためか  $(e, e' n_0)$  の  $C_2$  パラメータは 19 MeV において 0.7 という大きな値を示している。また，Siegert 定理が成り立てば縦，横成分の位相差は負の値をとるはずなのに，正の値をとっている。励起エネルギー 19 MeV 付近は検出閾値付近なのでこの測定点が 0.7 という値をとったのは，測定の誤差（系統誤差を含む）も考えられる。

同様に  $(e, e' n_1)$  と  $(e, e' p_1)$  の  $C_2$  の値を第9図に示す。縦-横干渉項を比べると  $(e, e' n_1)$  は縦-横干渉項はほとんど 0 であるが， $(e, e' p_1)$  は -1 近傍の値をとる。しかし，励起エネルギーが高くなると  $(e, e' p_1)$  の縦-横干渉項も 0 に近づいてくる。縦-横干渉項に見られる違いは  $(e, e' n_1)$  と  $(e, e' p_1)$  の違いからくるものか，測定する励起エネルギーの範囲が等しければ同じ大きさなのか，同じ測定領域の比較は興味ある測定である。

### 3.4 縦応答関数

今回求められた，縦 E1 成分  $A_0 = D \cdot V_L |C_1(q)|^2 (1 + \delta)$  と光核反応の結果と比較を行



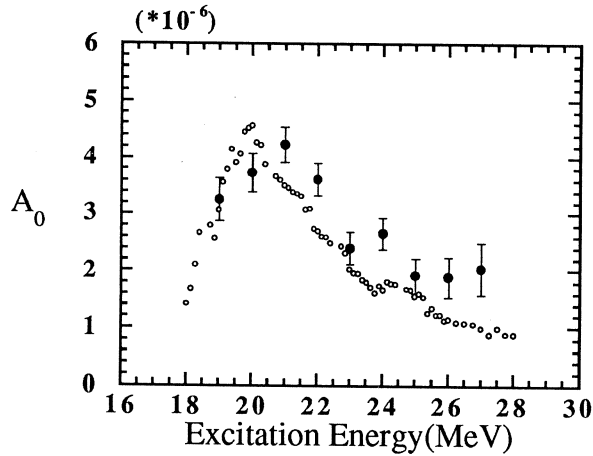
第9図  $^{40}\text{Ca}(e, e' n_1)$  と  $(e, e' p_1)$  の縦-横干渉項の比較。  
 黒丸:  $(e, e' n_0)$  反応の実験点, 白丸:  $(e, e' p_0)$  反応の実験点。

なう。そのためには、まず光核反応の横 E1 成分を知る必要がある。光核反応が E1 遷移にのみ依るものとする、 $(\gamma, \text{abs})$  断面積<sup>12)</sup>から、横遷移行列要素  $|T_1(\omega)|^2$  を求めることが出来る。これを Seigert 定理を用いて光子点における縦遷移行列要素  $|C_1(\omega)|^2$  に変換した。この値に Goldhaber-Teller 模型を用いて、 $q_{\text{eff}} = 0.35 \text{fm}^{-1}$  での縦遷移行列要素  $|C_1(q)|^2$  を求めた。このとき、E1 に縦遷移行列要素  $|C_1(\omega)|^2$  遷移による形状因子は Uberall の模型を使用した<sup>13)</sup>。また、中性子放出比  $B_n$  は  $\sigma(\gamma, n) / \sigma(\gamma, \text{abs})$  から求められた値を用いた。

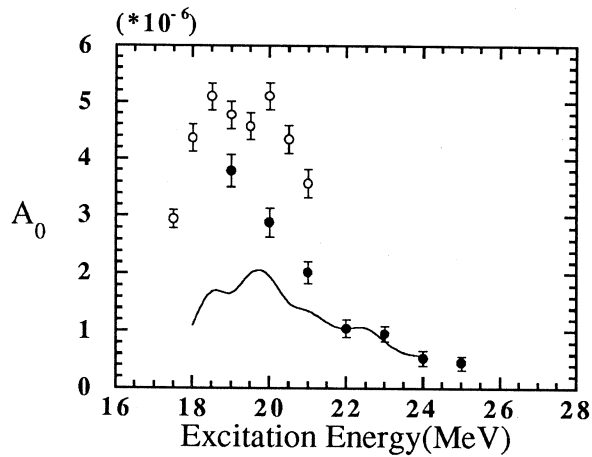
各励起エネルギーごとに中性子放出比を求め、縦 E1 成分  $A_0 = D \cdot V_L |C_1(q)|^2 (1 + \delta)$  を求めた。 $(\gamma, n)$  から求めた縦 E1 成分  $A_0 = D \cdot V_L |C_1(q)|^2 (1 + \delta)$  と  $(e, e' n)$  の縦 E1 成分を第10図に示す。 $(\gamma, n)$  では、20MeV ピーク、 $(e, e' n)$  では、21MeV ピークの励起関数になっている。 $(e, e' n)$  で 20MeV の縦 E1 成分が小さい理由としては、中性子検出器の検出閾値が 3 MeV であるため、 $n_1$  の事象が 20MeV においては測定されないことが考えられる。縦 E1 成分の大きさは  $(\gamma, n)$  と約 20~30% の誤差で一致した。

同様に第11図、第12図に  $(e, e' n_0)$ 、 $(e, e' n_1)$  反応による縦 E1 成分  $A_0 = D \cdot V_L |C_1(q)|^2 (1 + \delta)$  についての今回の実験値と、 $(e, e' p_0)$ 、 $(e, e' p_1)$ 、 $(\gamma, n_0)$  より求めた縦 E1 成分の値を示す。

$(e, e' n_0)$  を  $(\gamma, n_0)$  と比較すると、反応断面積の形状が異なることが分かる。22MeV 以上では  $(e, e' n_0)$  と  $(\gamma, n_0)$  ではほぼ一致しているが、低励起エネルギー領域において



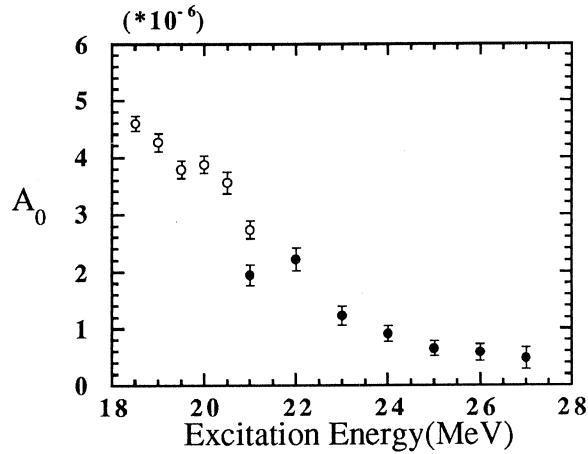
第10図  $^{40}\text{Ca}(e, e' n), (\gamma, n)$  反応の縦応答関数。  
 黒丸：  $(e, e' n)$  反応の実験点, 白丸：  $(\gamma, n)$  反応の実験点。



第11図  $^{40}\text{Ca}(e, e' n_0), (e, e' p_0), (\gamma, n_0)$  反応の縦応答関数。  
 黒丸：  $(e, e' n_0)$  反応の実験点, 白丸：  $(e, e' p_0)$  反応の実験点,  
 実線：  $(\gamma, n_0)$  反応の実験点。

$(e, e' n_0)$  反応断面積の方が大きく、特に19MeVにおいて、 $(e, e' n_0)$  の反応断面積が  $(\gamma, n_0)$  に比べ2倍大きい。

また、 $(\gamma, p_0)$  と  $(\gamma, n_0)$  の反応断面積を比較するとその比は約2.2で、 $(\gamma, p_0)$  の反応断面積が大きい<sup>15)</sup>。データの重なりが少ないが、 $(e, e' n_0)$  と  $(e, e' p_0)$  を比較しても  $(e, e' p_0)$  の反応断面積が大きく、20MeV付近ではほぼ2倍となっている。しかし、 $(e, e' n_0)$  の19MeV



第12図  $^{40}\text{Ca}(e, e' n_1)$ ,  $(e, e' p_1)$  反応の縦応答関数。  
 黒丸：  $(e, e' n_1)$  反応の実験点，白丸：  $(e, e' p_1)$  反応の実験点。

の値が1点だけ大きな値を示している。検出閾値付近の値なので、測定誤差が影響しやすい領域なので有意に縦E1成分が大きいとは言えない。また、19MeVにおける $(e, e' n)$ の縦E1成分より、 $(e, e' n_0)$ の縦E1成分が大きい値となっている。 $\chi^2$ フィッティングを行なうとき、あらかじめ仮定をたてて $\chi^2$ フィッティングパラメータを制限している。これらのパラメータが無視できないため、 $A_0$  (縦E1成分) に影響を及ぼしたことも考えられる。

#### §4. まとめ

$^{40}\text{Ca}(e, e' n)$  反応実験を  $q_{\text{eff}}=0.35\text{fm}^{-1}$ 、励起エネルギー19~27MeV について行なった。今回の結果から、 $(e, e' n_0)$  反応は  $(\gamma, n_0)$  反応実験から得られた光子点における値と違わなかった。また、 $(e, e' p)$  反応と比較するとE1-E2干渉項成分は大差ないが、非干渉項成分に違いが現われた。光子点における比較において、光核反応と $(e, e' x)$  反応は違いがないことから、 $(e, e' n)$  と  $(e, e' p)$  の違いは放出される粒子の電荷の違いが現われているものと考えられる。

今回の実験では中性子検出閾値が $^{137}\text{Cs}$ のコンプトンエッジなので、閾値付近の検出効率の取り扱いから3MeV以上の中性子の事象しか知ることができなかった。しかし、検出閾値を低くすると偶然同時計数によるバックグラウンドも飛躍的に増加するために、そのバックグラウンドの差し引きによる誤差が大きくなる。今後は巨大共鳴全域を測定できるように更に低い検出

閾値により実験を行ない，中性子放出閾値付近までの情報を得られるように更に新しい工夫が望まれる。

### 参 考 文 献

- 1) 高桑智恵, 斎藤悌二郎, 鈴木伸介, 高久圭二, 藤平 力, 中川武美, 阿部 健 : 核理研究報告 **23** (1990) 172.
- 2) A. Tanaka, T. Hino, H. Kawahara, M. Nomura, T. Tamae, M. Sugawara, H. Tsubota, H. Miyase and Y. Kawazoe : Nucl. Phys. **A489** (1988) 381.
- 3) J. D. Kellie, A. R. Curran, S. J. Hall, G. I. Crawford, J. L. Robertson and D. T. Burns : Nucl. Phys. **A515** (1990) 125.
- 4) W. E. Kleppinger and J. D. Walecka : Ann. Phys. **146** (1983) 349.
- 5) Y. Torizuka, K. Itoh, Y. M. Shin, Y. Kawazoe, H. Matsuzaki and G. Takeda : Phys. Rev. **C11** (1975) 1174.
- 6) M. Goldhaber and E. Teller : Phys. Rev. **74** (1948) 1046.
- 7) T. deForest and J. D. Walecka : Adv. in Phys. **15** (1966) 1.
- 8) A. J. F. Siegert : Phys. Rev. **52** (1937) 787.
- 9) R. Helm : Phys. Rev. **104** (1956) 1466.
- 10) M. Cavinato, M. Marangoni and A. M. Saruis : Nucl. Phys. **A422** (1984) 237.
- 11) M. Marangoni, P. L. Ottaviani and A. M. Saruis : report CNEN PT/FI (76) 10 (1976)
- 12) N. Bezić, D. Jamnik, G. Kernel, J. Krajnik and J. Šnajder : Nucl. Phys. **A117** (1968) 124.
- 13) H. Überall : Nuovo Cimento **41B** (1966) 25.
- 14) C. -P. Wu, J. E. E. Baglin, F. W. K. Firk and T. W. Philips : Phys. Rev. Lett. **29** (1969) 359.



Measurements of  ${}^9\text{Be}(\gamma, \text{pp})$  reactions  
at  $80 \leq E_\gamma \leq 100$  MeV

T. Suda, K. Maeda, S. Itoh<sup>†</sup>, O. Konno<sup>†</sup>, H. Matsuyama<sup>†</sup>  
I. Nomura<sup>†\*</sup>, Y. Sugawara<sup>†</sup>, T. Terasawa<sup>†</sup>, M. Thompson<sup>††</sup>  
J. Eden<sup>††</sup>, D. McLean<sup>††</sup> and T. Bates<sup>††</sup>

*College of General Education, Tohoku University*  
<sup>†</sup> *Laboratory of Nuclear Science, Tohoku University*  
<sup>††</sup> *School of Physics, University of Melbourne*

We have measured  ${}^9\text{Be}(\gamma, \text{pp})$  reaction using tagged photons in the photon energies from 80 up to 100 MeV. The measured angular correlations between two outgoing protons and the cross sections relative to  $(\gamma, \text{pn})$  reaction were found to be accounted for as the effect of the final state interactions after the photoabsorption process by pn pair. The missing energy spectrum of the  $(\gamma, \text{pp})$  reaction is also discussed.

## §1. Introduction

The study of the photoabsorption mechanism, especially in the photon energy region below the pion photoproduction threshold, is important, because the mechanism strongly corresponds to the electromagnetic currents that the incoming photon couples with. The electromagnetic current is connected with the potential that nucleons feel in the nucleus through the Gauge Invariance. For example, one body currents originates from the kinetic energy term of the Hamiltonian, two body currents corresponds to the two body potential that includes such as the isospin-isospin coupling term and/or the velocity dependent terms.

The study of the photoabsorption mechanisms for nucleus have been carried out extensively by experimentally and theoretically in this photon energy region. It is well known that the measured  $(\gamma, \text{p})$ ,  $(\gamma, \text{n})$ ,  $(\gamma, \text{pn})$  cross sections can be qualitatively accounted for by the phenomenological quasi-deuteron model. This model assumes the photon is absorbed by the 'pn' pair, so-called quasi-deuteron, in a nucleus, and uses the free deuteron photodisintegration cross section. Gari & Hebach pointed out by their microscopic calculations<sup>1)</sup> that in heavier nuclei, the meson exchange currents play dominant role for the photoabsorption processes as the deuteron photodisintegration<sup>2)</sup>. Considering the dominant role of MEC for the deuteron case, the success of the Quasi-Deuteron (QD) model seems to be consistent with what Gari & Hebach pointed out.

In the case of  $(\gamma, pp)$  reaction, since the MEC does not contribute to the 'pp' system in nucleus, the  $(\gamma, pp)$  cross sections is expected to be much smaller than those of  $(\gamma, pn)$  if the MEC plays an dominant role for the photoabsorption process. The recent experimental results support these expectations<sup>3)</sup>. In order to study the  $(\gamma, pp)$  reactions we measured  ${}^9\text{Be}(\gamma, pp)$  reaction with large solid angle proton detection system.

## §2. Experimental Set Up

The experimental set up is shown in Fig. 1. This experiment was performed at Tohoku

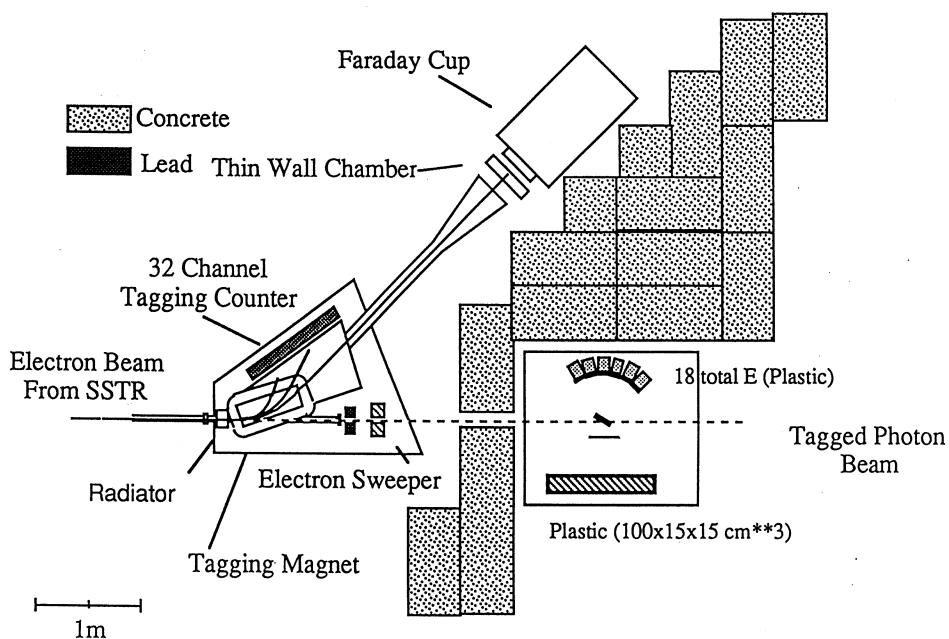


Fig.1  ${}^9\text{Be}(\gamma, pp)$  experimental setup.

University using the continuous electron beam provided from the Tohoku 300 MeV electron linac and the pulsed beam stretcher ring. More than 80% duty cycle electron beam were injected into the photon tagging system, which produces monochromatic photons from 30 MeV up to 100 MeV in 2.6 MeV step for 130 MeV electron beam. For this experiment, however, only 70 to 100 MeV photon were tagged due to relatively large Q-value of the  $(\gamma, pp)$  reaction and high proton detection threshold (15 MeV). Typical photon intensity was  $3 \times 10^6$  /sec. Natural beryllium sheet of 200 mg /cm<sup>2</sup> thickness was inclined 30 degree relative to the photon beam. 18 sets of the segmented

proton detector arrays each of which has 3  $E$  counters ( $7.5\text{cm } \phi \times 10\text{cm}$  thick), and one long plastic scintillator ( $100 \times 15 \times 15\text{cm}^3$ ) were arranged in order to cover a wide range of opening angle of two outgoing protons. It covers from 90 to 265 degrees, and the total solid angle was about 1sr. Thin plastic scintillation counters (2mm) were placed in front of each  $E$  counters as  $\Delta E$  counters for the particle identification.

### § 3. Experimental Results

Fig.2 shows the opening angle distributions of  ${}^9\text{Be}(\gamma, \text{pn})$  and  $(\gamma, \text{pp})$  events using

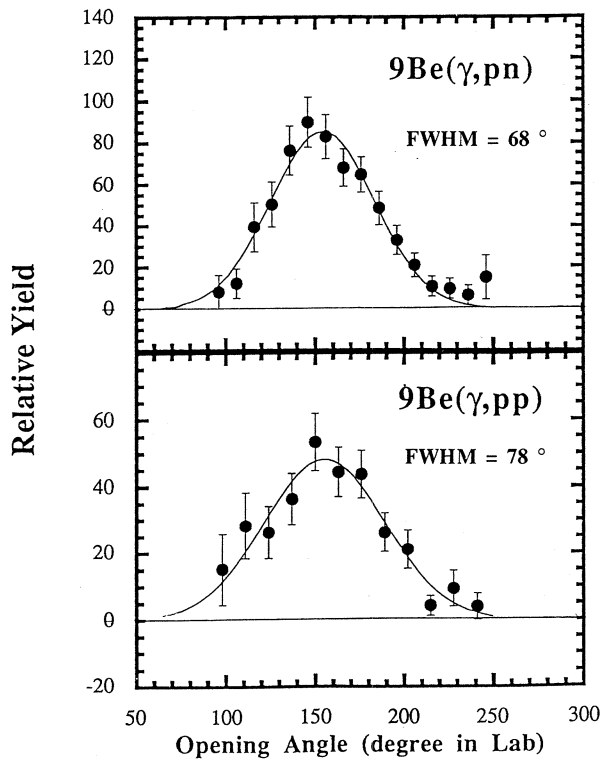


Fig.2 Angular correlations of  ${}^9\text{Be}(\gamma, \text{pn})$  and  ${}^9\text{Be}(\gamma, \text{pp})$  reactions. All accepted data are sorted according to their opening angles.

all accepted data. To construct this figure,  $(\gamma, \text{px})$  data are sorted according to their opening angles after corrections of the geometrical acceptance for  $(\gamma, \text{pp})$  events. The angular resolution of  $(\gamma, \text{px})$  data was estimated to be about 7 degrees.

The angular correlation of  ${}^9\text{Be}(\gamma, \text{pn})$  show a clear peak at around 160 degree,

and the  $(\gamma, pp)$  events show also a clear back-to-back correlation. These data are fitted by the Gaussian and 68 deg for  $(\gamma, pn)$  and 78 deg for  $(\gamma, pp)$  are obtained as FWHM, respectively. The contributions to the  $(\gamma, pp)$  events from the n-p collisions in the  $\Delta E$  counters of  $(\gamma, pn)$  events are estimated to less than 10% of the total  $(\gamma, pp)$  events.

For further analysis, the software threshold is set to be 17 MeV for the  $(\gamma, px)$  events for both  $(\gamma, pn)$  and  $(\gamma, pp)$  reactions, and the photon energies are limited to be 80 to 100 MeV. Fig.3 shows the angular correlation of  ${}^9\text{Be}(\gamma, pn)$  and  $(\gamma, pp)$  with the software threshold as mentioned above. Even though statistics are not good enough, a back-to-back correlations are still observed. The Gaussian fit gives 59 and 85 degrees for  $(\gamma, pn)$  and  $(\gamma, pp)$  as FWHM, respectively.

The ratio of the cross sections of  $(\gamma, pn)$  and  $(\gamma, pp)$  are derived after integrating over the energy and emission angles of the 2nd nucleon of the  $(\gamma, px)$  events. The solid angle correction factor for  $(\gamma, pn)$  and  $(\gamma, pp)$  events, which corrects for the limited detector acceptance, are calculated by Monte Carlo simulations using the fitted Gaussian distributions. The error of this factor is estimated to be about 15%. The efficiency for the neutron detections is calculated by the efficiency calculation code 'TOTEFF'. The ratio of the cross section is found to be  $4.4\% \pm 1.1\%$  in which the statistical error and the error of the Gaussian fit are included. Fujii *et al.* have also measured  ${}^9\text{Be}(\gamma, pp)$  and  $(\gamma, pn)$  using tagged photons in the  $\Delta$  resonance regions at Tokyo University <sup>4)</sup>. Their data are also plotted together with the present data in Fig.4 as a function of photon energy. One can see that the ratio of the  $(\gamma, pp)$  and  $(\gamma, pn)$  cross sections are almost constant from 100

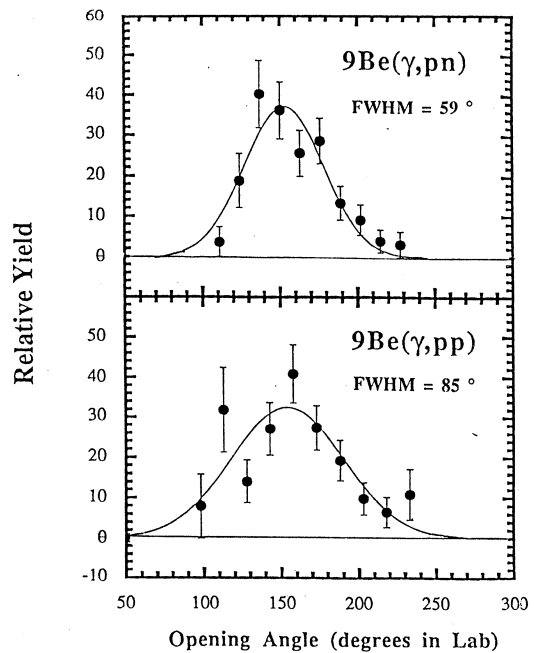


Fig. 3 Same as Fig.2 but  $80 < E < 100$  MeV,  $E_p > 17$  MeV,  $E_n > 17$  MeV.

MeV up to 400 MeV, 5-10%.

In order to consider this cross section ratio, the possibility is checked whether the  $(\gamma, pp)$  comes from the final state interaction of the  $(\gamma, pn)$  events because the cross section of  $(\gamma, pn)$  is much larger. Unfortunately there is no microscopical calculations available for the  $(\gamma, pp)$  reactions in this photon energy, the Monte Carlo simulations code was developed which assumes that the photon is absorbed by the QD, then the resultant proton and/or neutron suffer the nucleon-nucleon collisions inside a nucleus. Harmonic oscillator wave functions are used for the center of mass motion of the QD. The range parameter  $\alpha$  of the wave function is adjusted to give the correct width of the  $(\gamma, pn)$  angular distributions, 100 MeV/c was used as  $\alpha$  which seems to be consistent with the value determined by the electron scattering ( $\alpha = 110 \text{ MeV}/c$ )<sup>2)</sup>. The inter-nuclear cascade model is used in order to simulate the internal collisions<sup>3)</sup>. Fermi gas model is used with the usual parameters, the free N-N scattering cross sections are used taking into account the effect of Pauli blocking. The angular distribution of the  $(\gamma, pn)$  and  $(\gamma, pp)$  calculated by this code are shown in Fig.5. The solid line represents the  $(\gamma, pn)$  angular

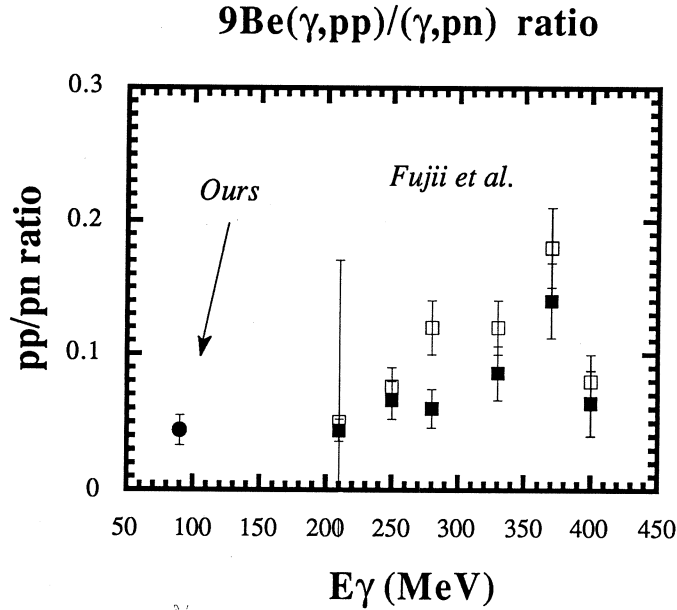


Fig.4 The ratio of the cross sections of  ${}^9\text{Be}(\gamma, pn)$  and  ${}^9\text{Be}(\gamma, pp)$  reactions.

distributions, dashed line shows the events after suffering the final state interactions. The simulated  $(\gamma, px)$  events by the cascading process still has back-to-back correlations and 61 deg. and 80 deg. are obtained as FWHM of  $(\gamma, pn)$  and  $(\gamma, pp)$  angular correlations, respectively. In this model calculations, the ratio of about 7% is found as the cross

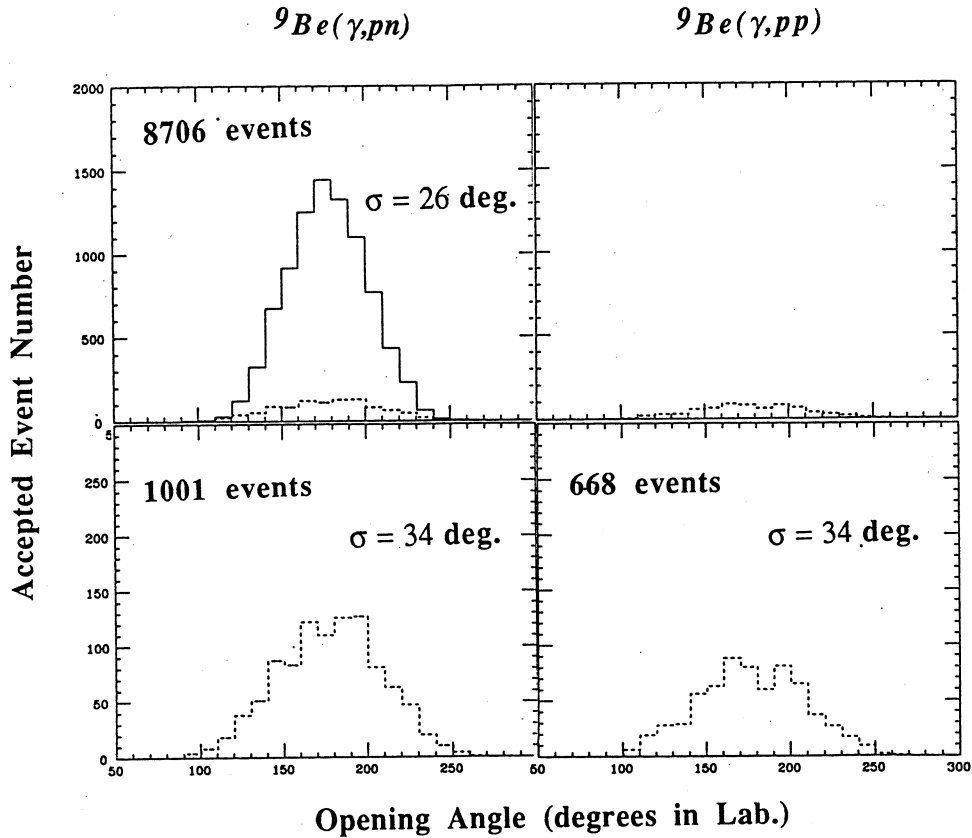


Fig.5 Angular correlations of  ${}^9\text{Be}(\gamma, pn)$  and  ${}^9\text{Be}(\gamma, pp)$  reactions simulated by the quasi-deuteron model and the cascade model.

sections of  $(\gamma, pp)$  and  $(\gamma, pn)$  under the present experimental conditions. Even though this value seems to overestimate the experimental results, this phenomenological simulations reproduce the tendency of the present data well. The obtained experimental  $(\gamma, pp)$  angular correlations and the cross sections can be understood in the frame work of the quasi-deuteron model taking the effect of the final state interaction into account.

Fig.6 shows a missing energy spectrum of the  ${}^9\text{Be}(\gamma, pp)$  reactions for the photon energies from 80 to 100 MeV. A peak is observed at around 30 MeV, where is the

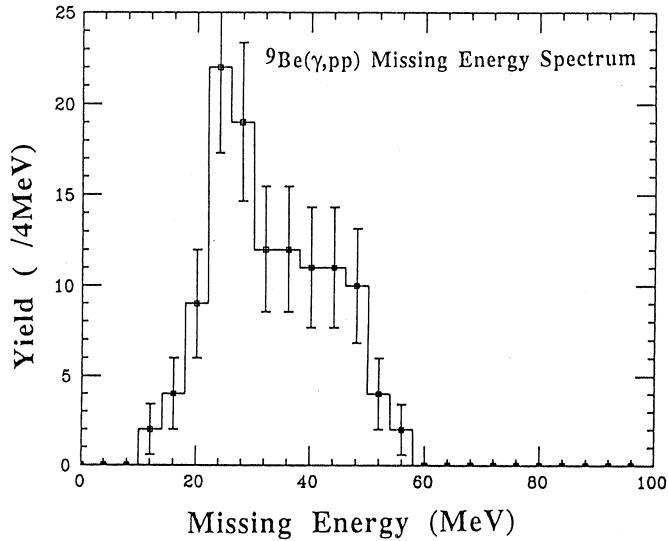


Fig.6 Missing energy spectrum of  ${}^9\text{Be}(\gamma, pp)$  reactions.

separation energy of two protons from  ${}^9\text{Be}$  nucleus. This peak can not be explained by the any effect of the final state interaction simulated by the cascade model. It may suggest the existence of the direct  $(\gamma, pp)$  reactions.

#### §4. Conclusion

We have measured  ${}^9\text{Be}(\gamma, pp)$  reactions using tagged photons in the photon energy region from 80 to 100 MeV. Proton detection system, which has about 1 sr solid angle, covered the opening angle between two protons from 90 to 265 degrees.

- 1) The angular correlations of  ${}^9\text{Be}(\gamma, pp)$  shows a clear back-to-back correlation as that of  $(\gamma, pn)$ .
- 2) The ratio of the  $(\gamma, pp)$  and  $(\gamma, pn)$  cross sections is about 4%
- 3) The observed angular correlations and cross sections of the  $(\gamma, pp)$  reaction can be interpreted as the effect of the final state interactions after  $\gamma + pn \rightarrow p + n$  process.
- 4) A peak at around 2p threshold of  ${}^9\text{Be}$  nucleus is observed in  ${}^9\text{Be}(\gamma, pp)$  missing energy spectrum.

### References

\* Present address : RIKEN, Wako, Saitama, Japan

- 1) M. Gari and H. Heback : Phys. Rep. **72** (1981) 1.
- 2) H. Arenhovel : Z. Phys. **A302** (1981) 25.
- 3) T. Suda : Dr. Thesis, Tohoku University, 1987.
- 4) Y Fujii : Dr. Thesis, Tohoku University, 1986.
- 5) C.W.De jager H. De Vries, C. De Vries : ADNDT**14** (1974) 479.



## Tagging Efficiency for an Uncollimated Photon Beam

J. A. Eden<sup>a</sup>, G. J. O'Keefe, R. P. Rassool.

D. J. McLean and M. N. Thompson

T. Suda<sup>† b</sup>, I. Nomura<sup>† c</sup>, J. Yokokawa<sup>†</sup>, O. Konno<sup>†</sup>,  
T. Terasawa<sup>†</sup> and Y. Torizuka<sup>†</sup>

*School of Physics, The University of Melbourne,  
Parkville 3052, Australia*

<sup>†</sup> *Laboratory of Nuclear Science, Tohoku University,  
Mikamine, Sendai 982, Japan*

A prescription for evaluating the tagging efficiency of an uncollimated photon beam is given, allowing tagging efficiencies of  $\sim 75\%$  to be determined with an accuracy of about 1%.

### §1. Introduction

In the measurement of the  $^{40}\text{Ca}(\gamma, n)$  cross section<sup>1)</sup>, neutron detector modules were located at angles of 45, 60, 75, 90 and 135 degrees relative to the incident photon beam. The inclusion of the 135°-neutron detector modules required considerable alterations to the normal<sup>2)</sup> placement of the concrete shielding. In a test to investigate any consequent changes in the background contribution to the data, the target was removed and the neutron TOF-spectra were examined. A ' $\gamma$ -flash' peak was observed, resulting from the detection of photons scattered from the collimator. Although the photon background is unimportant since it can be rejected with particle identification in the off-line analysis, any associated neutron background resulting from  $(\gamma, n)$  reactions in the collimator would be time-correlated with tagged photons, and therefore contaminate the TOF-spectra. This correlated neutron background was eliminated by removing the collimator, and further background measurements confirmed that no ' $\gamma$ -flash' peak remained.

## §2. Tagging efficiency for a Collimated beam

The absolute number of tagged photons of energy  $E_\gamma$  is given by,

$$N_\gamma(E_\gamma) = N_e(E_\gamma) \xi_{tag}(E_\gamma) \quad (1)$$

where  $N_e(E_\gamma)$  is the number of electrons detected in the tagged photon spectrometer channel that tags photons of energy  $E_\gamma$ , and  $\xi_{tag}(E_\gamma)$  is the tagging efficiency of that channel. The tagging efficiency is the fraction of the tagged photon flux that falls on the target. In order to determine the tagging efficiency, a thick lead-glass Cherenkov detector (which has 100% efficiency for the detection of photons of all energies of interest) is located in place of the target, and is used to determine the number of tagged photons that hit the target per tagged electron. Hence, for a collimated beam, the tagging efficiency is given by,

$$\xi_{tag}(E_\gamma) = \left\{ \frac{N_e(E_\gamma) \otimes \int_{collimator} B(E_\gamma, \theta_\gamma) d\Omega_\gamma}{N_e(E_\gamma)} \right\} \quad (2)$$

where

$N_e(E_\gamma)$  is the number of electrons detected in the tagged photon spectrometer that tag photons of energy  $E_\gamma$ ,

$B(E_\gamma, \theta_\gamma)$  is the normalized (*i. e.*,  $\int B(E_\gamma, \theta_\gamma) d\Omega_\gamma = 1$ ) bremsstrahlung cross section, differential in photon energy and angle, and integrated over the solid angle of the collimated photon beam,

$N_e(E_\gamma) \otimes \int_{collimator} B(E_\gamma, \theta_\gamma) d\Omega_\gamma$  is the number of bremsstrahlung photons that are radiated within the solid angle of the collimator and are detected (by the Cherenkov detector) in coincidence with electrons that tag photons of energy  $E_\gamma$ .

For a collimated beam, the fraction of the tagged photons that falls on the target and the Cherenkov detector is the same. Hence eq. (2) need never be calculated since the measured tagging efficiency for the Cherenkov detector gives the tagging efficiency for the target. At this laboratory, the tagging efficiency for a collimated beam is usually about<sup>2,3</sup> 50%.

## §3. Tagging Efficiency for an Uncollimated Beam

In the present experiment the photon beam collimator was removed from the tagging

spectrometer, so the fraction of the tagged-photon flux that was incident on the face of the target (circular, diameter=70 mm) and the face of the Cherenkov detector (square, side length=100 mm) is different, so that a correction for the different boundary conditions of the target and Cherenkov detectors is required.

### 3.1 On-axis correction

If the photon-beam and target axes are co-linear, the tagging efficiency is given by,

$$\xi_{tag}(E_\gamma) = \left\{ \frac{N_e(E_\gamma) \otimes \int_{Cherenkov} B(E_\gamma, \theta_\gamma) d\Omega_\gamma}{N_e(E_\gamma)} \right\} \left\{ \frac{\int_{Target} B(E_\gamma, \theta_\gamma) d\Omega_\gamma}{\int_{Cherenkov} B(E_\gamma, \theta_\gamma) d\Omega_\gamma} \right\} \quad (3)$$

where the first of the two terms in braces is the result of a tagging efficiency measurement, and the second of the terms corrects for differences in the tagged photon flux that falls on the Cherenkov and the target.

### 3.2 Beam direction monitor

In practice, it was not possible to guarantee that the photon-beam and target axes were perfectly co-linear, as required by eq. (3). Instabilities in the position of the electron beam at the bremsstrahlung radiator were confined to the horizontal plane, and presumably result from minor instabilities in the stretcher ring. The horizontal offset  $S$ , between the photon beam and target axes, as measured at the face of the target, was monitored by comparing the ratio of discriminated counts  $R$ , from two thin plastic scintillator detectors which were located either side of the target, as shown in Fig. 1. The average

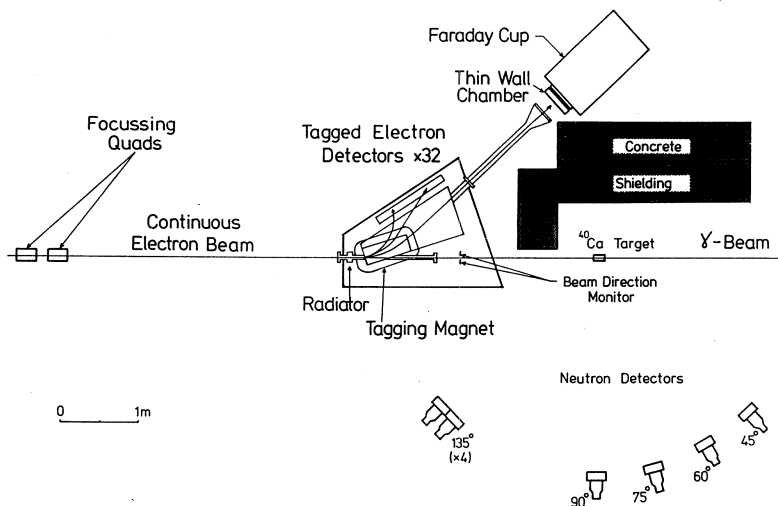


Fig. 1. Experimental arrangement for the  $^{40}\text{Ca}(\gamma, n)$  cross section measurement.

tagging efficiency for channels 1, 3, 5 and 7 is plotted against  $S$  and  $R$  in Fig. 2, where  $X$  gives the position of the electron beam as measured at the bremsstrahlung radiator. By assuming that the electron beam position is well defined at the last focusing quad, it is possible to modify eq. (3) to account for the offset  $S$ , or equivalently, the ratio  $R$ .

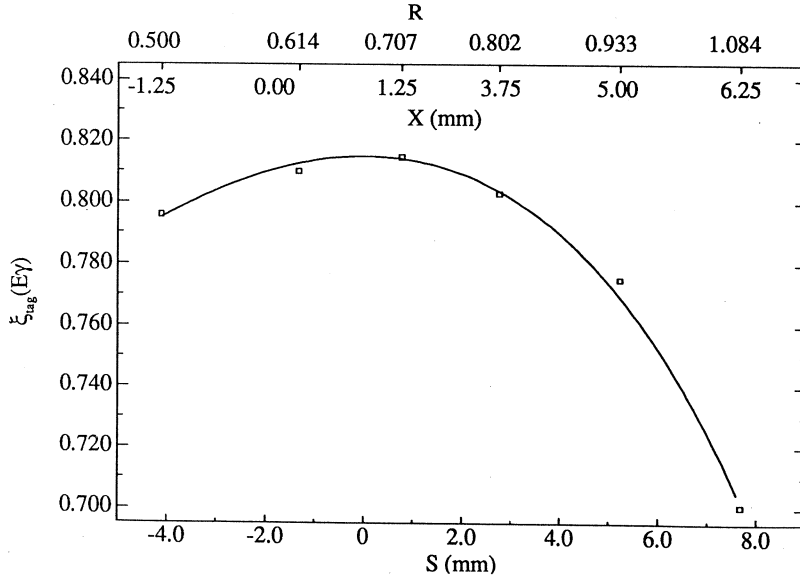


Fig. 2. Variation of tagging efficiency with beam direction variables  $R$  and  $S$ .

### 3.3 Off-axis correction

From the above discussion, the tagging efficiency of an uncollimated, off-axis beam is taken as,

$$\begin{aligned}
 \xi_{tag}(E_{\gamma}, R) = & \left\{ \frac{N_e(E_{\gamma}) \otimes \int_{Cherenkov} B(E_{\gamma}, \theta_{\gamma}, R = R_0) d\Omega_{\gamma}}{N_e(E_{\gamma})} \right\} \\
 & \times \left\{ \frac{\int_{Cherenkov} B(E_{\gamma}, \theta_{\gamma}, R = R_0) d\Omega_{\gamma}}{\int_{Cherenkov} B(E_{\gamma}, \theta_{\gamma}, R) d\Omega_{\gamma}} \right\} \\
 & \times \left\{ \frac{\int_{Target} B(E_{\gamma}, \theta_{\gamma}, R) d\Omega_{\gamma}}{\int_{Cherenkov} B(E_{\gamma}, \theta_{\gamma}, R) d\Omega_{\gamma}} \right\} \quad (4)
 \end{aligned}$$

where the first of the three terms in braces is the result of a tagging efficiency measurement for a photon beam centred on the target, (i. e. when  $R = R_0$ ), the second of the terms corrects for the loss of tagged photon flux when the photon beam is not centred on

the target face, (i. e. when  $R \neq R_0$ ), and the third of the terms, hereafter denoted as  $F(E_\gamma, R)$ , corrects for differences in the tagged-photon flux that is incident on the target and Cherenkov detector.

The product of the first two terms was determined simply by measuring the tagging efficiency at various beam positions, as shown in Fig. 3. The last term in eq. (4),  $F(E_\gamma, R)$ ,

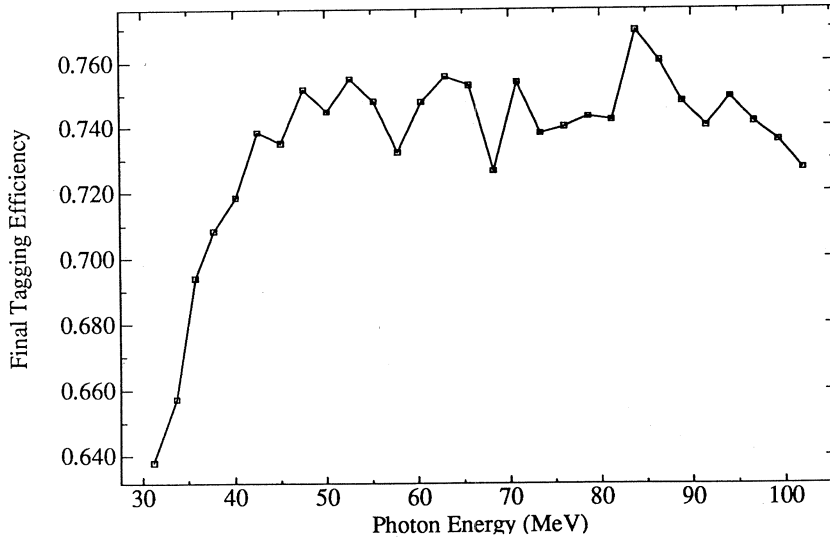


Fig. 3. Average tagging efficiency for selected beam directions before the correction  $F(E_\gamma, R)$  is applied.

has been calculated numerically using the bremsstrahlung cross section described in the following section. The results are presented in Fig. 4.

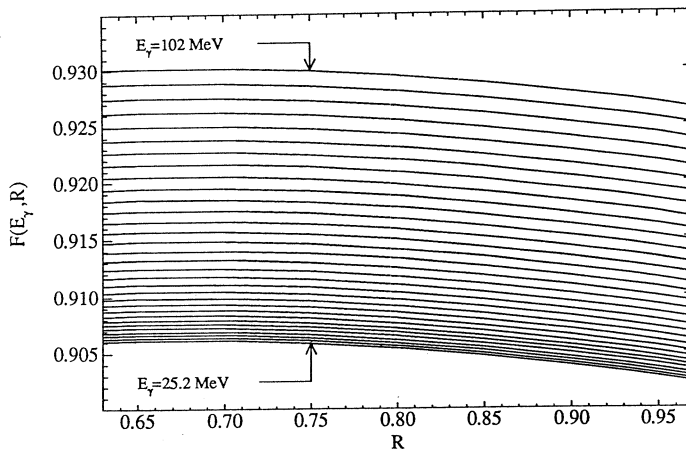


Fig. 4. Correction to measured  $\xi_{tag}(E_\gamma)$  for Target/Cherenkov boundary conditions.

For each data-taking run (intervals of about 1000 seconds or less), the ratio of the counts in the beam direction scalers  $R$ , is recorded and allows an evaluation of the correction  $F(E_\gamma, R)$ , and hence the absolute number of photons. The total number of photons is then obtained by summing the photon doses from each of the individual data-taking runs. Although the average tagging efficiency for the experiment is not required for any analysis procedures, it is of interest in planning future experiments, and is given in Fig. 5.

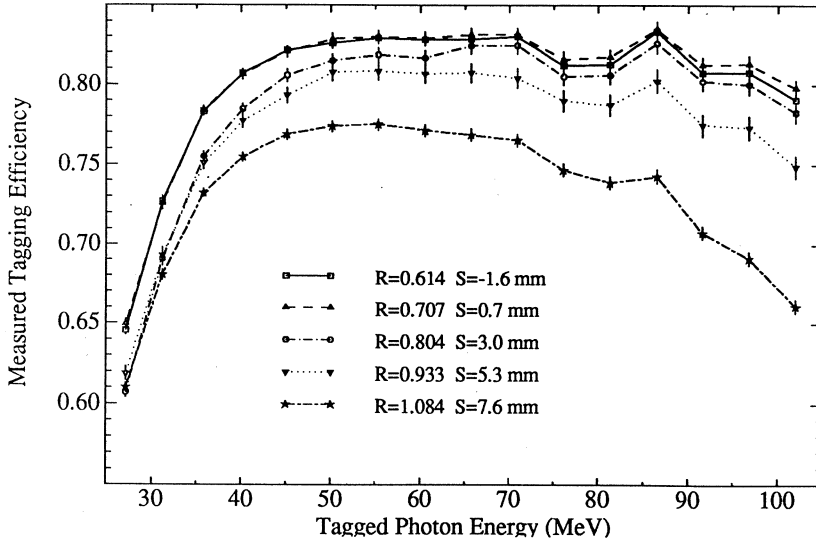


Fig. 5. Corrected tagging efficiency for  $^{40}\text{Ca}(\gamma, n)$  experiment.

### 3.4 The bremsstrahlung cross section

The diameter of the electron beam at the bremsstrahlung radiator was measured to be 2.5 mm, and the resulting bremsstrahlung cross section was evaluated with Coulomb wavefunctions and assumed intermediate screening (equation 2 CS from ref. 6). With a trivial manipulation of the already published form, one finds

$$\frac{d^2 \sigma}{dE_\gamma d\theta_\gamma} = \frac{2Z^2 r_0^2}{137} \frac{2p_0 u \xi^2}{E_\gamma E_0^2} \{(E_0^2 + E^2)(3 + 2\Gamma) - 2E_0 E(1 + 4u^2 \xi^2 \Gamma)\} \quad (5)$$

where,

$$\xi = (1 + u^2)^{-1} \quad u = p_0 \theta_\gamma \quad \delta = \frac{E_\gamma}{2EE_0} \quad (6)$$

$$\Gamma = \ln\left(\frac{1}{\delta}\right) - 2 - f(Z) + F\left(\frac{\delta}{\xi}\right) \quad (7)$$

The notation used here differs from that of Koch and Motz only in that here the photon energy and emission angle are given by  $E_\gamma$  and  $\theta_\gamma$ , rather than by  $k$  and  $\theta_0$ . Koch and Motz give only a primitive expression for  $f(Z)$ . A better form, published by Davies et al<sup>4)</sup>, is

$$f(Z) = a^2 \left\{ \frac{1}{1+a^2} + 0.20206 - 0.0369a^2 + 0.0083a^4 - 0.002a^6 \right\} \quad (8)$$

where  $a = \alpha Z$  and  $\alpha = 1/137$ . In addition, for the case of intermediate screening, Koch and Motz give only a tabulated form for  $F\left(\frac{\delta}{\xi}\right)$ . The more general description published by Olsen and Maximon<sup>5)</sup>, is

$$F\left(\frac{\delta}{\xi}\right) = -\frac{1}{2} \sum_{i=1}^3 \alpha_i^2 \ln(1+B_i) + \sum_{i=1}^3 \sum_{(j \neq i)=1}^3 \alpha_i \alpha_j \left[ \frac{1+B_j}{B_i-B_j} \ln(1+B_j) + \frac{1}{2} \right] \quad (9)$$

where

$$B_i = \left( \frac{\beta_i \xi}{\delta} \right)^2, \quad \beta_i = \left( \frac{Z^{1/3}}{121} \right) b_i \quad (10)$$

and

$$\alpha_1 = 0.10 \quad \alpha_2 = 0.55 \quad \alpha_3 = 0.35 \quad (11)$$

$$b_1 = 6.0 \quad b_2 = 1.20 \quad b_3 = 0.30 \quad (12)$$

### 3.5 Precision of the correction

The systematic uncertainty in the absolute number of tagged photons results entirely from the uncertainty in the correction  $F(E_\gamma, R)$ . If the beam moves offaxis, the number of photons within both the Cherenkov detector and target solid angles would be reduced, so, as can be seen from Fig. 4, the ratio of these quantities,  $F(E_\gamma, R)$ , is almost unchanged. In fact, an inspection of Fig. 4 shows that  $F(E_\gamma=102, R=0.7)$  and  $F(E_\gamma=102, R=0.9)$  differ by only 0.24%. A similar result is seen at other photon energies. Figure 2 shows that the uncertainty in the ratio  $R$  is significantly less than the variation considered above, so the systematic error in  $F(E_\gamma, R)$  resulting from inaccuracies in  $R$  can be safely ignored.

Another source of systematic uncertainty in  $F(E_\gamma, R)$  results from the 3% uncertainty in the theoretical expression<sup>6)</sup> for the bremsstrahlung cross section. However, the present analysis is not sensitive to inaccuracies in the magnitude of the theoretical bremsstrahlung cross section. In addition, small inaccuracies in the angular dependence of

the bremsstrahlung cross section will tend to cancel, as seen above in the insensitivity of  $F(E_\gamma, R)$  to variation in  $R$ . The total uncertainty in the tagging efficiency is taken to be about 1 %.

#### §4. Conclusions

This report provides a prescription for evaluating the tagging efficiency of an uncollimated and off-axis photon beam, allowing tagging efficiencies of  $\sim 75\%$  to be determined with an accuracy of about 1 %. The procedure offers a considerable enhancement to the efficiency of tagged photon measurements of  $(\gamma, n)$  cross sections measured at the Laboratory for Nuclear Science.

#### Acknowledgements

This work was supported by the Australian Research Grant Committee and the Department of Industry, Technology and Commerce. One of the authors (J. A. E.) was supported financially by a University of Melbourne Postgraduate Scholarship.

#### References

- <sup>a</sup>Present Address : The Institute fur Theoretische Physik, Ruhr Universitat Bochum D-463, Germany
- <sup>b</sup>Present Address : College of General Education, Tohoku University, Sendai 980, Japan
- <sup>c</sup>Present Address : Institute for Nuclear Study, University of Tokyo, Midori-cho, Tanashi, Tokyo 188, Japan
- 1) J. A. Eden : Ph. D. thesis, The University of Melbourne, 1990, unpublished.
  - 2) P. D. Harty *et al* : Phys. Rev. **C37** (1988) 13.
  - 3) T. Terasawa *et al* : Nucl. Instr. and Meth. **248** (1986) 429.
  - 4) H. Davies, H. A. Bethe and L. C. Maximon : Phys. Rev. **93** (1954) 788.
  - 5) H. Olsen and L. C. Maximon : Phys. Rev. **114** (1959) 887.
  - 6) H. W. Koch and J. W. Motz : Phys. Rev **31** (1959) 920.



# A treatment of the Final-state Interaction for Photonuclear Reactions

J. A. Eden<sup>a</sup> and M. N. Thompson  
*School of Physics, The University of Melbourne,  
Parkville 3052, Australia*

The final state interaction is considered for the Gottfried factorized cross section. Numerical examples are presented for the  $^{40}\text{Ca}(\gamma, pn)$  and  $^{40}\text{Ca}(\gamma, n)$  reactions.

## §1. Introduction

The final-state interactions (FSI) for photonuclear reactions are the processes whereby energetic photonucleons suffer interactions as they escape the residual nucleus. The 'surface refraction' and 'absorption' processes are considered separately as distinct contributions to the final-state interaction. The surface refraction process, allowing photonucleons to refract as they emerge from the nuclear potential well, cannot change the magnitude of the total cross section, but may redistribute the strength in the angular dependence of the differential cross section. The absorption process accounts for the loss of photonucleons as a result of inelastic collisions while escaping the nucleus.

In principle, the FSI could be calculated in a Born approximation, with the real and imaginary parts of the optical potential representing the surface refraction and absorption processes respectively. However the absorption process is relatively strong, and cannot be reliably calculated in a Born approximation. Following Gottfried's approach, the two corrections are treated as separate problems. The surface refraction correction is calculated in a plane-wave Born approximation (PWBA) and the absorption correction is presented as a simple development of earlier phenomenological treatments.

## §2. Surface Refraction Correction

### 2.1 Gottfried's Approach

Gottfried<sup>1)</sup> derived the transition amplitude for the  $(\gamma, pn)$  reaction as

$$T_{nb'l'L}^{\lambda} = T_0 + T_n + T_p \quad (1)$$

where the direct contribution is,

$$T_0 = M_{\lambda} f_{nb'l'L}(p_q) Y_{LM}(p_q) \quad (2)$$

and the surface refraction terms for each of the photonucleons takes the form,

$$T_N = \sum_{\alpha} M_{\lambda\alpha} \frac{\langle \Psi_f^{(-)} | \nu | \Phi_{\alpha} \rangle}{(E_f - E_{\alpha} + i\eta)} f_{nb'l'L}(p'_q) Y_{LM}(p'_q) \quad (3)$$

where,

$$\vec{p}'_q = \vec{p}_q + \vec{p}'_N - \vec{P}_N \quad (4)$$

The terms appearing in eqs. (1-4) are defined as follows,

$f_{nb'l'L}(p_q) Y_{LM}(p_q)$  is the amplitude for finding a pn-pair with bound-state momentum  $\vec{p}_q$ .

The explicit form of  $f_{nb'l'L}(p_q)$  is given in ref 2.

$\vec{p}_n, \vec{p}_p$  are the bound-state momenta of the neutron and proton before they absorb the photon.

$\vec{p}'_q, \vec{p}'_{np}$  are the momenta of the pn-pair and nucleon in the intermediate state  $\Phi_{\alpha}$ , before the nucleon is refracted into the final state  $\Psi_f^{(-)}$  with momentum  $\vec{P}_N$ .

$M_{\lambda}$  is the photo-absorption matrix element giving the amplitude for a photon of polarisation  $\lambda$  exciting the pn-pair into the observed final state,  $\Psi_f^{(-)}$ ,

$M_{\lambda\alpha}$  is the off-energy-shell photo-absorption matrix element giving the amplitude for a photon of polarisation  $\lambda$  exciting the pn-pair into the intermediate state  $\Phi_{\alpha}$ ,

$\langle \Psi_f^{(-)} | \nu | \Phi_{\alpha} \rangle$  is the exact scattering amplitude for the optical-model potential, and,  $E_f - E_{\alpha} + i\eta$  is the propagator for the intermediate state.

An exact and explicit form for eq. (3) is not available since the magnitude and phase of the off-energy shell matrix elements are not known. To make progress, Gottfried assumed that  $M_{\lambda\alpha} \sim M_{\lambda}$ , i.e. all the off-shell transition matrix elements are assumed to be the same. (In the Quasi-Deuteron Model (QDM),  $|M_{\lambda}|^2$  is approximated by the deuteron photo-absorption cross section, and the FSI processes which introduce  $M_{\lambda\alpha}$  are completely ignored). If small angle scattering dominates the surface refraction process, the kinematics will be similar to the direct process, so the approximation  $M_{\lambda\alpha} \sim M_{\lambda}$  may be acceptable. In any event, the variation of  $T_N$  with  $\Phi_{\alpha}$  is expected<sup>2)</sup> to be dominated by  $f_{nb'l'L}$ . Using only the real part of the optical-model potential, Gottfried

writes the total transition amplitude as,

$$T_N = M_{\mathcal{N}} \frac{2Mv}{(2\pi^3)} \int \frac{\langle \vec{P}_N | \nu | \vec{p}'_N \rangle}{P_N^2 - p_N'^2 + i\eta} f_{nl'LL}(p'_q) Y_{LM}(p'_q) d\vec{p}'_N \quad (5)$$

where  $\langle \vec{P}_N | \nu | \vec{p}'_N \rangle$  is the calculated scattering amplitude for the real optical-model potential,  $M$  is the nucleon mass and  $v$  is the normalization volume.

Equation (1) gives the transition amplitude for a well defined final state, and includes three terms corresponding to direct photonucleon emission, neutron refraction and proton refraction. For the direct term, no surface refraction is acknowledged, so that

$$\vec{p}_q = \vec{p}_n + \vec{p}_p - \vec{p}_\gamma \quad (6)$$

The pictorial representation of the direct term is given in Fig.

1. The treatment of the kinematics describing the photo-absorption process is similar to other calculations<sup>3,4)</sup>, but is subtly different from that of Gottfried's, since the present calculation acknowledges the difference between the internal and external photonucleon energies. The distinction becomes important only when the internal and external photonucleon energies are quite different, *i. e.*, when nucleons are ejected with small kinetic energies or from deeply bound orbitals.

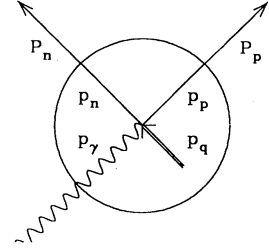


Fig. 1. Pictorial representation of direct photo-absorption by a pn-pair.

The neutron and proton surface refraction processes are shown in figures 2 (i) and 2 (ii) respectively. Refraction of both nucleons is ignored to first order in the Born approximation.

The calculation of the neutron and proton surface refraction terms is the same, but for definiteness, consider the neutron surface refraction calculation, where direct photo-disintegration of the pn-pair leads to an intermediate nuclear state  $\Phi_\alpha$  with photoneutron momentum  $\vec{p}'_n$  and photoproton momentum is  $\vec{p}'_p$ . This implies (see equation (4)) that the bound state momentum of the pn-pair was,

$$\begin{aligned} \vec{p}'_q &= \vec{p}'_n + \vec{p}'_p - \vec{p}_\gamma \\ &= \vec{p}_q + \vec{p}'_n - \vec{p}_n \end{aligned} \quad (7)$$

Since Fig. 2 represents *all* intermediate states in the neutron refraction process, it is necessary to intergrate over all intermediate-state photoneutron phase space, and deter-

mine the amplitudes for

1. finding a pn-pair with momentum  $\vec{p}_q'$ ,
2. the photon coupling to the pn-pair and causing a transition to an intermediate state where the nucleons have not yet escaped the nuclear potential well, and have momenta  $\vec{p}_n'$  and  $\vec{p}_p'$ ,

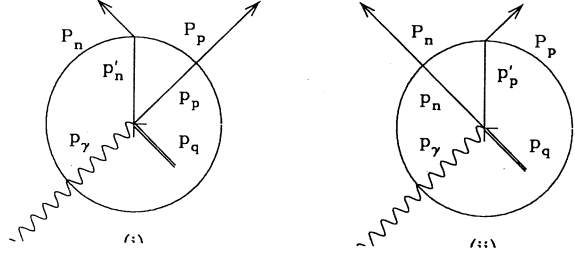


Fig. 2. Pictorial representation of surface refraction contributions to the transition amplitude for (i) neutron refraction, and (ii) proton refraction.

3. the neutron refraction process  $\vec{p}_n' \rightarrow \vec{P}_n$ , where the internal photoneutron transfers momentum to the  $(A-2)$ -system, resulting in the required (external) neutron momentum.

The assumption  $M_{\lambda a} \sim M_{\lambda f}$ , means that step 2 is ignored, and the off-shell photo-absorption matrix element is taken to be the same as it was for the direct term.

Gottfried used plane waves for the intermediate and final states, so eq. (5) becomes,

$$T_N = M_{\lambda f} \frac{2M}{(2\pi^3)} \int \int \frac{e^{i(\vec{p}_n' - \vec{R}) \cdot \vec{r}}}{P_N^2 - p_N'^2 + i\eta} \nu(r) f_{nln'l}(p_q') Y_{LM}(p_q') d\vec{p}_N' \quad (8)$$

Defining  $h_{nln'l LM}$  such that,

$$f_{nln'l L}(p_q) Y_{LM}(p_q) = (2\pi)^{-3/2} \int e^{-i\vec{q} \cdot \vec{R}} h_{nln'l LM}(\vec{R}) d\vec{R} \quad (9)$$

Gottfried obtained,

$$T_N = -M_{\lambda f} \frac{M}{(2\pi)^{5/2}} \int \frac{e^{i\vec{q} \cdot \vec{r} - \vec{R}}}{|\vec{r} - \vec{R}|} e^{-\vec{q} \cdot \vec{R}} h_{nln'l LM}(\vec{R}) d\vec{r} d\vec{R} \quad (10)$$

where

$$\vec{q}_N = \vec{p}_q - \vec{P}_N \quad (11)$$

Gottfried then adopted several simplifying assumptions, one of which was to consider only the 1s harmonic oscillator shell. In the following section, Gottfried's treatment is extended to include any set of single-particle orbitals for the bound-state pn-pair.

## 2.2 Extension to higher orbitals

Direct numerical evaluation of eq. (10) is not convenient, so the exponential terms

are expanded as partial waves :

$$\frac{e^{iP_N|\vec{r}-\vec{R}|}}{|\vec{r}-\vec{R}|} = 4\pi P_N \sum_{l=0}^{\infty} \sum_{m_1=-l_1}^{l_1} j_{l_1}(P_N r_{<}) h_{l_1}^{\dagger}(P_N r_{>}) Y_{l_1 m_1}^*(\hat{r}) Y_{l_1 m_1}(\hat{R}) \quad (12)$$

$$e^{-i\vec{P}_N \cdot \vec{r}} = 4\pi \sum_{l=0}^{\infty} \sum_{m_2=-l_2}^{l_2} i^{-l_2} j_{l_2}(P_N r) Y_{l_2 m_2}^*(\hat{P}_N) Y_{l_2 m_2}(\hat{r}) \quad (13)$$

$$e^{-i\vec{q}_N \cdot \vec{R}} = 4\pi \sum_{l=0}^{\infty} \sum_{m_3=-l_3}^{l_3} i^{-l_3} j_{l_3}(|q_N| R) Y_{l_3 m_3}^*(\hat{q}_N) Y_{l_3 m_3}(\hat{R}) \quad (14)$$

An explicit form for  $h_{nl'n'l'LM}$  is also required. Taking the Fourier transform of eq. (9) gives,

$$h_{nl'n'l'LM}(\vec{R}) = (2\pi)^{-3/2} \int f_{nl'n'l'L}(p) Y_{LM}(\hat{p}) e^{i\vec{p} \cdot \vec{R}} d\vec{p} \quad (15)$$

This is recast into a more convenient form by substituting,

$$e^{i\vec{p} \cdot \vec{R}} = 4\pi \sum_{l=0}^{\infty} \sum_{m_4=-l_4}^{l_4} i^{l_4} j_{l_4}(pR) Y_{l_4 m_4}^*(\hat{p}) Y_{l_4 m_4}(\hat{R}) \quad (16)$$

into eq. (15), and since,

$$\int_{\Omega_p} Y_{LM}^*(\hat{p}) Y_{l_4 m_4}(\hat{p}) d\Omega_p = \delta_{Ll_4} \delta_{Mm_4} \quad (17)$$

eq. (15) be,

$$h_{nl'n'l'LM}(\vec{R}) = \left(\frac{2}{\pi}\right)^{1/2} Y_{LM}(\hat{R}) i^{L'} g_{nl'n'l'L}(R) \quad (18)$$

where

$$g_{nl'n'l'L}(R) = \int_0^{\infty} f_{nl'n'l'L}(p) j_L(pR) p^2 dp \quad (19)$$

Equations (12), (13), (14) and (18) are then substituted into eq. (10). After separating radial and angular parts, and noting that,

$$\int_{\Omega_r} Y_{l_1 m_1}^*(\hat{r}) Y_{l_2 m_2}(\hat{r}) d\Omega_r = \delta_{l_1 l_2} \delta_{m_1 m_2} \quad (20)$$

and

$$\int_{\Omega_R} Y_{l_1 m_1}(\hat{R}) Y_{l_3 m_3}(\hat{R}) Y_{LM}(\hat{R}) d\Omega_R = \frac{l_1 l_3 L}{\sqrt{4\pi}} \begin{pmatrix} l_1 & l_3 & L \\ m_1 & m_3 & M \end{pmatrix} \begin{pmatrix} l_1 & l_3 & L \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \quad (21)$$

a manageable expression for  $T_N$  is obtained,

$$T_N = -M_N \frac{8M_N P_N}{\sqrt{\pi}} \sum_{l_1 l_3} R_{nl'n'l'L l_1 l_3}(|\vec{q}_N|, \vec{P}_N) A_{L l_1 l_3}(|\hat{q}_N|, \hat{P}_N) \quad (22)$$

where

$$\begin{aligned} R_{nl'n'l'L l_1 l_3}(|\vec{q}_N|, \vec{P}_N) &= \int_R j_{l_3}(|\vec{q}_N| R) g_{nl'n'l'L}(R) R^2 \\ &\times \int_r j_{l_1}(P_N r) j_{l_1}(P_N r_{<}) h_{l_1}^{\dagger}(P_N r_{>}) \nu(r) r^2 dr dR \end{aligned} \quad (23)$$

and

$$A_{L l_1 l_3}(\hat{q}_N, \hat{P}_N) = (i)^{L-l_1-l_3} l_1 l_3 L \begin{pmatrix} l_1 & l_3 & L \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}$$

$$\times \sum_{m_1 m_3} (-)^{m_1+m_3} \begin{pmatrix} l_1 & l_2 & l_3 \\ m_1 & m_2 & m_3 \end{pmatrix} Y_{l_1-m_1}(\hat{P}_N) Y_{l_2-m_2}(\hat{Q}_N) \quad (24)$$

and  $\hat{L} = \sqrt{2L+1}$ .

The real part of the optical-model potential is taken as,

$$V(r) = V_c - Vf(x_0) + \left(\frac{\hbar}{m_\pi c}\right)^2 V_{so}(\vec{\sigma} \cdot \vec{l}) \frac{1}{r} \frac{d}{dr} f(x_{so}) \quad (25)$$

where

$$V_c = \begin{cases} ZZ'e^2/r & \text{if } r \geq R_c \\ (ZZ'e^2/2R_c)(3-r^2/R_c^2) & \text{if } r \leq R_c \end{cases} \quad (26)$$

$$f(x) = \frac{1}{(1+e^x)}, \quad x = \frac{(r-r_0A^{1/3})}{a_0} \quad (27)$$

$$\vec{\sigma} \cdot \vec{l} = \begin{cases} l & \text{if } j = l + \frac{1}{2} \\ -(l+1) & \text{if } j = l - \frac{1}{2} \end{cases} \quad (28)$$

and

$$\left(\frac{\hbar}{m_\pi c}\right)^2 \cong 2.000 \text{ fm}^2 \quad (29)$$

### 2.3 Surface refraction and the Gottfried factorized cross section

The transition amplitude for the  $(\gamma, pn)$  reaction which acknowledges the surface refraction process can be obtained from eqs. (1), (2) and (22). The approximation  $M_{\lambda\alpha} \sim M_{\lambda f}$ , ensures that the transition amplitude can still be factorized into two terms, representing the photo-absorption matrix element and the momentum density for the pn-pair. Hence it is possible to write the momentum density as,

$$F_{nl'n'l'}(p_q) = (T_0 + T_n + T_p)/M_{\lambda f} \quad (30)$$

The momentum densities, for direct  $F(p_q)$ , or direct+refraction  $F(p_q)$ , may be inserted to any Gottfried factorized cross section. For example, the QDM expression for the coplanar  $(\phi_n = \phi_p - \pi)(\gamma, pn)$  cross section is given by<sup>2)</sup>

$$\frac{d^4 \sigma_{qdm}}{dT_n d\Omega_n dT_p d\Omega_p} \Big|_{n'l;n'l'} = c_1 L \frac{N_{nlj} Z_{m'l;n'l'}}{A} F_{nl'n'l'}(p_q) \left\{ \frac{d\sigma_d(E'_\gamma, \theta''_p)}{d\Omega''_n} \right\} J_{pn} P_q^2 \delta_{\vec{p}_i} \quad (31)$$

so that by replacing  $F(p_q)$  in eq. (31) with  $F(p_q)$ , the QDM is modified to include the surface refraction process.

### 2.4 Results of the surface refraction correction

The present calculation of the surface refraction process for the  $(\gamma, pn)$  reaction is

more general than the QDM, however, so the importance of the surface refraction process is examined by a comparison of numerical results for  $F(p_q)$  and  $F'(p_q)$  for the  $^{40}\text{Ca}(\gamma, pn)$  reaction. Comparisons are presented in Figs. 3–6 for a variety of initial and final states. The initial states are specified by the photon energy and the single-particle shells  $(nlj; n'l'j')$  from which the pn-pair is ejected. The references to  $j$  and  $j'$  are needed to fix the relationship between the internal and external kinematics, and to determine the spin-orbit contribution to the optical-model potential. The final states are limited to co-planar photonucleon momenta. This restriction has *not* been used in deriving the transition amplitude of eq. (22), but it is adopted now to limit the choices of interesting final states to be examined.

In the deeply bound orbitals the number of quasi-deuteron pairs is relatively small, and the probability that the photonucleons escape is expected to be significantly lower than for the outer shells. Hence the cross section arising from the photodis-integration of pn-pairs whose constituent nucleons occupy the  $1s$  and  $1p$  orbitals is fairly small, and is restricted to large missing energies ( $E_m = E_\gamma - T_n - T_p - T_{A-2} - Q_{(\gamma, pn)}$ ). In addition, the results for the  $1p_{1/2}$  and  $1p_{3/2}$  are quite similar because the single-particle energies<sup>2)</sup> do not distinguish the spin-orbit splitting of the  $1p$  harmonic oscillator level, and the spin-orbit contribution to the optical-model potential<sup>6)</sup> is less important than the Coulomb and volume absorption terms. Hence, the momentum densities shown in Figs. 3–6 are restricted to  $1p$  and  $2s-1d$  shells.

An inspection of Figs. 3–6 shows that,

1. For the lower photon energies the refraction process enhances the momentum density in all shells, indicating that the Born approximation is failing.
2. For the higher photon energies the fine details in the shape of the momentum density alter when the refraction process is acknowledged.
3. The gross details in the shape of the momentum density are not changed except at small opening angles where the enhancement due to the refraction process is very large.
4. The sharp minima, occurring in the momentum densities for pn-pairs with a unique  $L$ , are smoothed out.

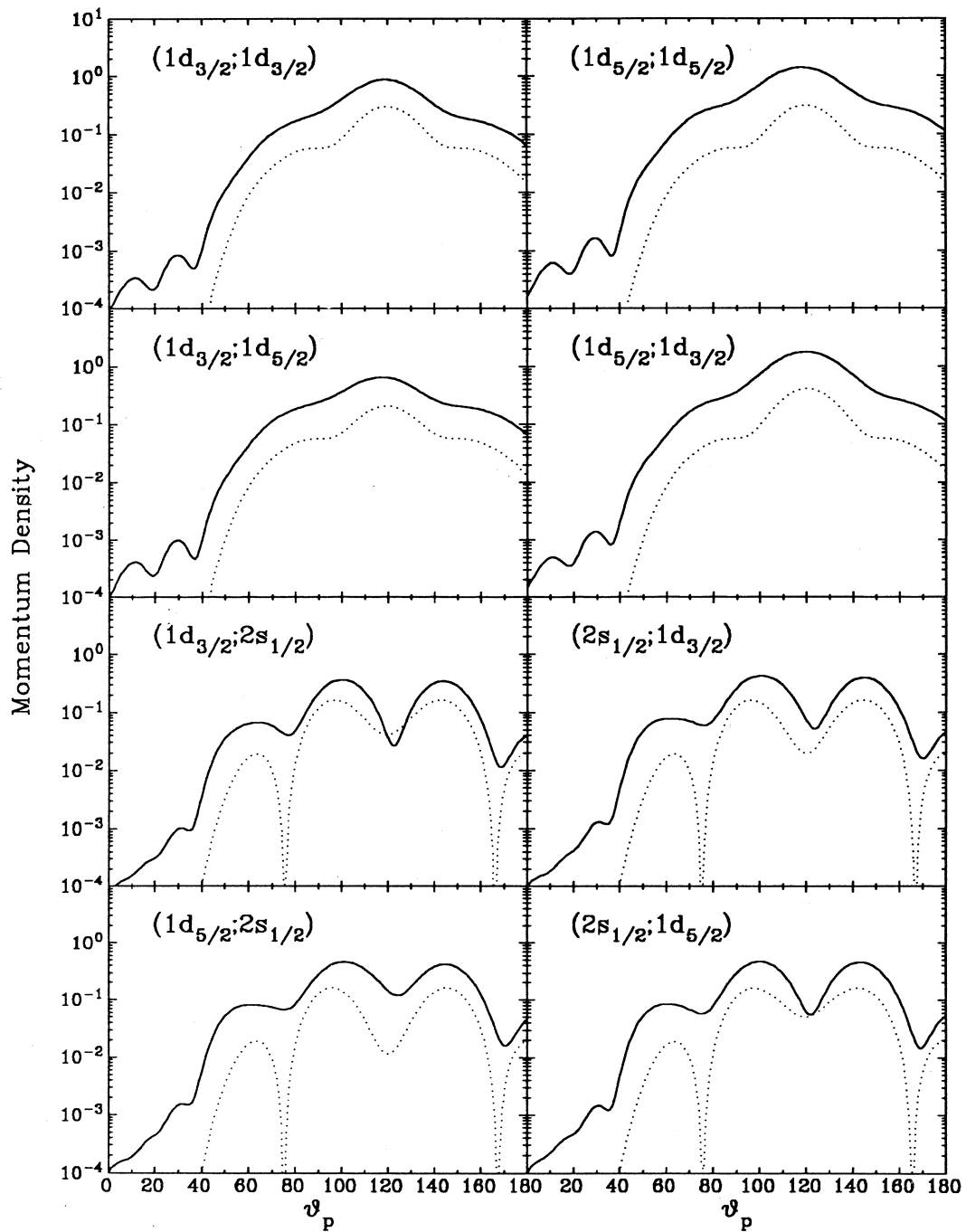


Fig. 3. 'Direct' (dotted line) and 'Direct+Refraction' (solid line) quasi-deuteron momentum densities for  $E_\gamma = 100$  MeV,  $T_n/T_p = 1$ , and  $\theta_n = 45^\circ$ .



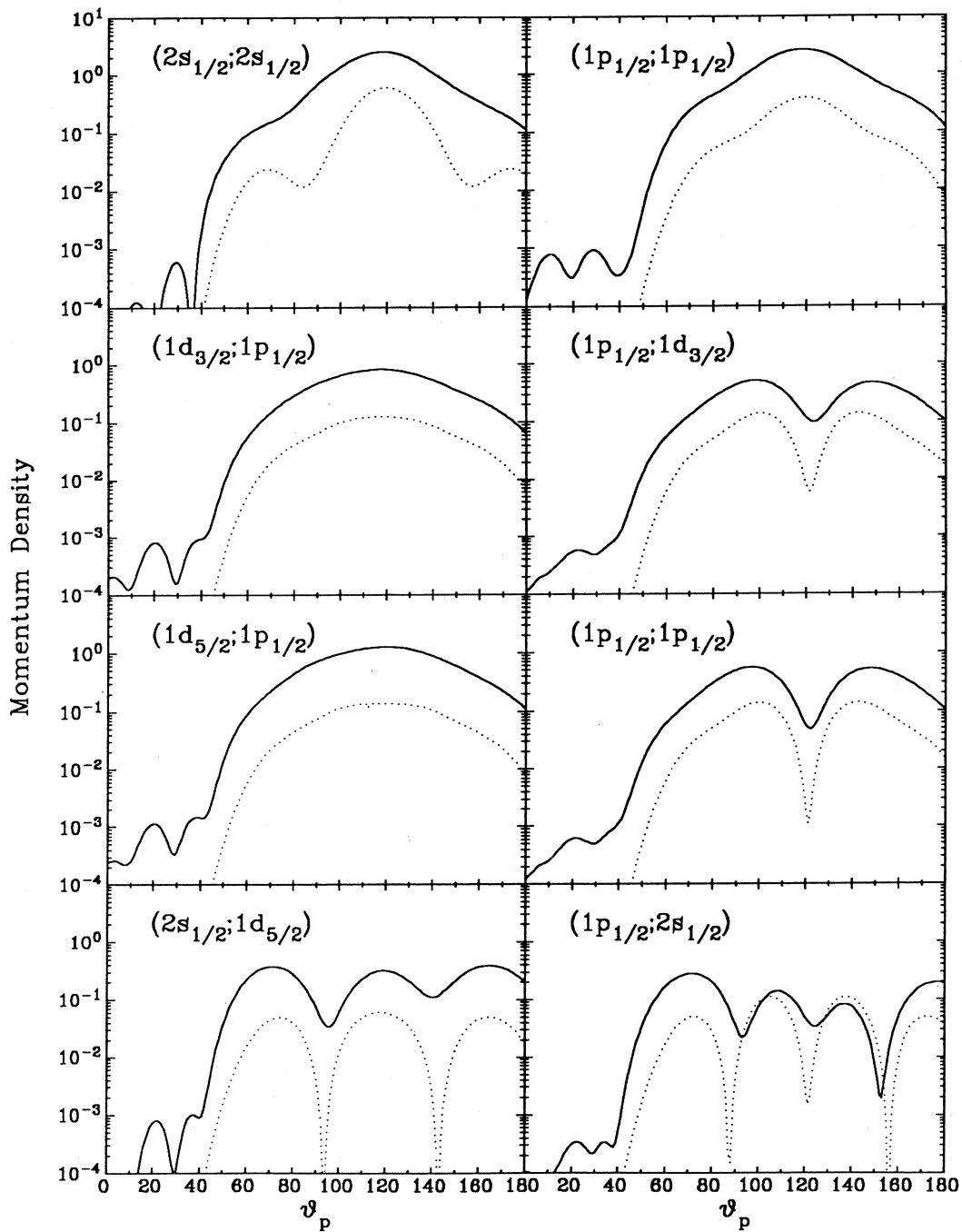


Fig. 4. 'Direct' (dotted line) and 'Direct+Refraction' (solid line) quasi-deuteron momentum densities for  $E_\gamma = 100$  MeV,  $T_n/T_p = 1$ , and  $\theta_n = 45^\circ$ .

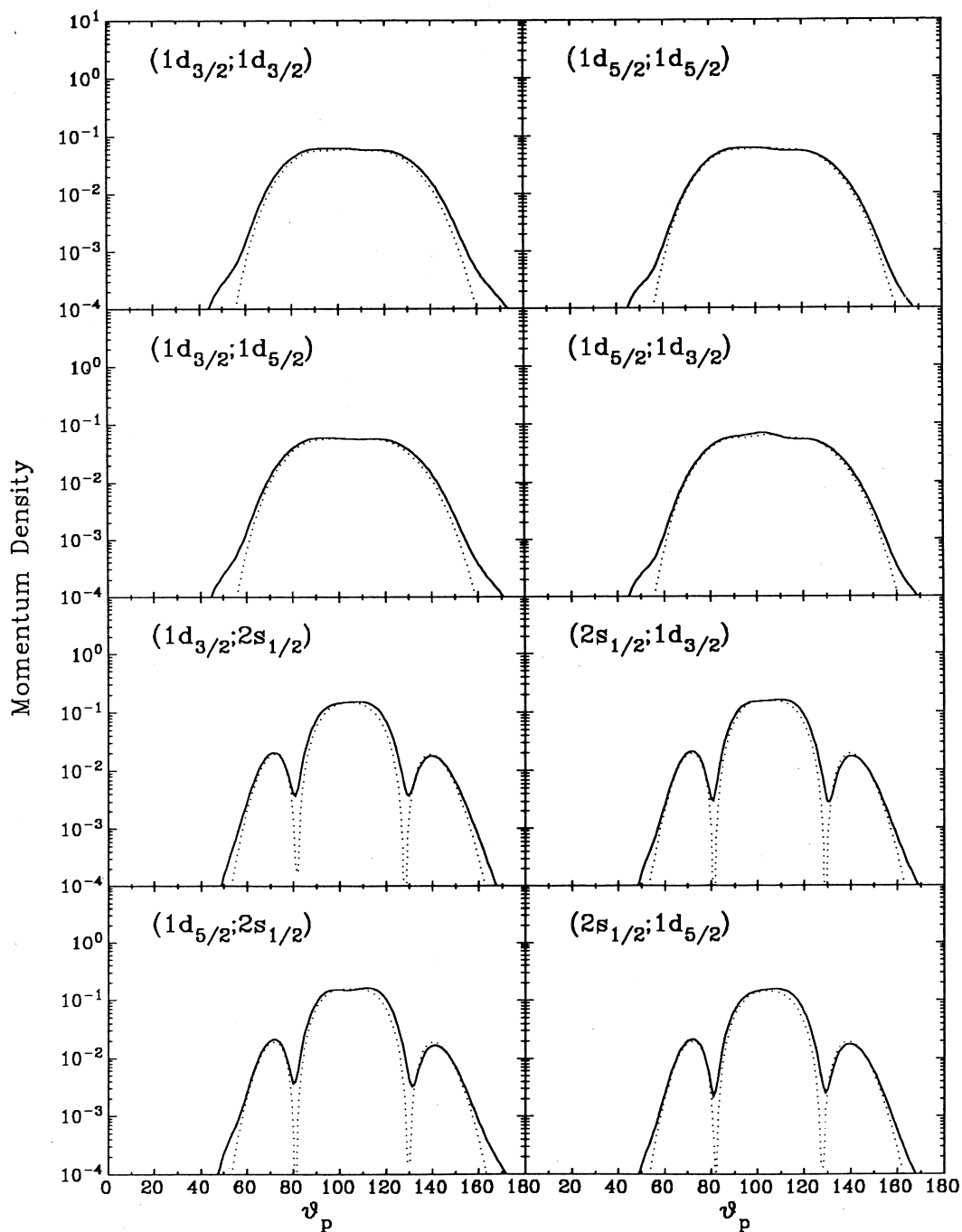


Fig. 5. 'Direct' (dotted line) and 'Direct+Refraction' (solid line) quasi-deuteron momentum densities for  $E_\gamma = 300$  MeV,  $T_n/T_p = 1$ , and  $\theta_n = 45^\circ$ .

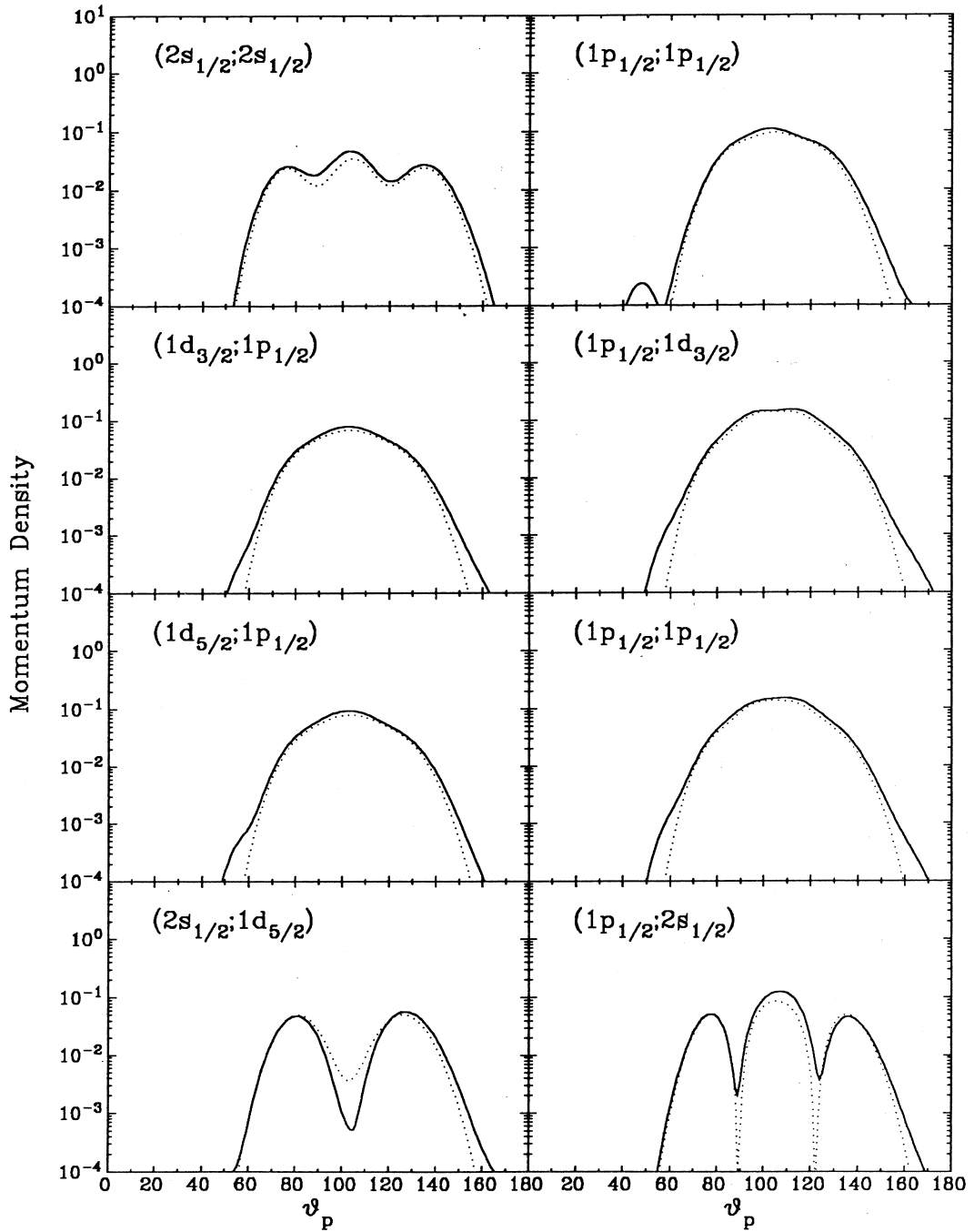


Fig. 6. 'Direct' (dotted line) and 'Direct+Refraction' (solid line) quasi-deuteron momentum densities for  $E_\gamma = 300$  MeV,  $T_n/T_p = 1$ , and  $\theta_n = 45^\circ$ .

The gross shape of the momentum density is almost unaltered, so it may be concluded that small angle scattering amplitudes dominate the refraction terms in the transition amplitude, particularly at large photon energies. This is an important point. It means that the on- and off-shell kinematics are usually fairly similar, and this lends some support to the approximation,  $M_{\lambda a} \sim M_{\lambda f}$ .

The quality of the results depends on the accuracy with which the momentum density and scattering amplitudes are calculated, on the reliability of the assumption  $M_{\lambda a} \sim M_{\lambda f}$ , and on the validity of the Born approximation.

Gottfried estimates that a momentum density calculated from realistic wavefunctions would be experimentally indistinguishable from the harmonic oscillator case, although more recent studies by Zabolitzky<sup>12)</sup> indicate that short-range correlations substantially enhance the momentum density at very large bound-state pn-pair momenta. Zabolitzky's findings suggest that the simple harmonic oscillator wavefunctions used in the present treatment will lead to an underestimation of the momentum density at small opening angles, and therefore to an overestimation of the enhancement due to the refraction process. It is important to note that although the (initial-state) NN-correlations and the surface refraction process are two distinct considerations in any photonuclear reaction calculation, their influence on the momentum density (for a Gottfried factorized cross section) is very similar.

The scattering amplitudes might be adequately represented provided the nucleon energy is not too small, but it must be admitted, for the lower photon energies of interest here, the photonucleons are not well represented by plane waves. Further problems arise because the kinematics describing the photo-absorption process for the direct and refraction terms are very different when the pair momenta is (assumed by the direct process to be) very large. This means the kinematics that should be used to calculate the on- and off-shell photo-absorption matrix elements are quite different, and hence the approximation  $M_{\lambda a} \sim M_{\lambda f}$ , may become unreliable.

At small opening angles, where the direct reaction requires the pn-pair momentum to be very large, the momentum density for the direct term becomes very small. Here the refraction terms completely dominate the transition amplitude. The very large

enhancement of the momentum density arises principally because the refraction terms are integrated over the internal phase space, and thus include contributions from the more readily available small pn-pair momenta. However, the Born approximation is not reliable when the refraction terms dominate the transition amplitude.

The refraction process should not alter the photo-absorption strength for transitions from the initial state to any definite intermediate state ; it should serve only to redistribute the strength into different final states. Hence, an accurate Born approximation calculation should satisfy the normalization requirement for the probability density function,

$$4 \pi \int p_q^2 F_{nln'l'}(p_q) dp_q = 1 \quad (32)$$

The present calculation is expected to be accurate only when both photonucleons have large kinetic energies and the pn-pair momentum is relatively small, i.e. at large photon energies, and at nucleon emission angles where the cross section is close to its maxima. At lower nucleon energies, the results are interesting mainly because they establish that the refraction corrections are significant, and should not be ignored. Since a better (distorted wave) calculation would probably retain the present approach as a leading term, it may be that the present results give the correct general trends even at lower nucleon energies, although this remains to be seen.

### 2.5 The Inclusive photonucleon reaction

The discussion of the surface refraction effect has so far assumed a  $(\gamma, pn)$  reaction and has therefore required specification of both the neutron and proton momenta in the final state. Since the inclusive  $(\gamma, n)$  cross section at high missing energy ( $E_m = E_\lambda - T_n - T_{A-1} - Q_{(\gamma, n)}$ ) is dominated by the  $(\gamma, pn)$  reaction<sup>5)</sup>, the inclusive  $(\gamma, n)$  cross section can be calculated by integrating the calculated  $(\gamma, pn)$  cross section over the phase space of the (undetected) photoproton. (The same argument applies to the calculation of the  $(\gamma, p)$  cross section).

Under these circumstances the transition amplitude is given by,

$$T_{nln'l' LM}^M = T_0 + T_n \quad (33)$$

i.e., if the transition amplitude is to be integrated over all photoproton phase space, there is no need to calculate the proton scattering amplitudes. A numerical evaluation of

this form is a straightforward extension of the procedures outlined earlier, but is quite cumbersome, and has not been attempted.

The importance of the nucleon refraction process in the inclusive  $(\gamma, n)$  reaction is expected to be considerably less important than for the  $(\gamma, pn)$  reaction. For the inclusive  $(\gamma, n)$  reaction, where the proton is free to emerge at any angle, experiments cannot select out final states where a direct reaction requires extreme pn-pair momenta. Hence the data is dominated by events with small pn-pair momentum. In the  $(\gamma, pn)$  reaction, these kinematical conditions are found to produce only minor changes to the momentum density.

### § 3. Absorption Correction

#### 3.1 Introduction

The nucleon transparency  $\eta$ , is the probability that a single photonucleon will escape the nucleus without interaction. As noted earlier, the absorption correction is too strong to be reliably treated by the Born approximation. However, earlier calculations<sup>9,7)</sup> have estimated the nucleon transparency as,

$$\eta = \frac{1}{V} \int e^{-X(\vec{r})/\lambda} d\vec{r} \quad (34)$$

where the integration is restricted to the nuclear volume,  $V$ , and,

$\lambda$  is the mean free path of the nucleon (or pion) inside the nucleus,

$X$  is the thickness of the nucleus through which the nucleon must travel in order to escape, and this depends on the starting position  $\vec{r}$  inside the nuclear volume.

There are a few implicit assumptions that are inappropriate for the present purposes:

1. The density distribution of photo-absorption sites is taken as uniform throughout the nucleus,
2. The nuclear volume is taken as a sphere of definite radius  $R$ ,
3. The nuclear density is assumed to be constant,
4. The mean free path is assumed to be independent of neutron kinetic energy.

#### 3.2 Development of earlier treatments

The estimation of  $\eta$  can easily be improved by replacing eq. (34) with,

$$\eta_{nl}(T_n) = \frac{\int \rho_{nl}(r) e^{-\sigma_{NN}(T_n) \int_{t=0}^{\infty} \rho_A(r'(t))^{nl} dt} d\vec{r}}{\int \rho_{nl}(r) d\vec{r}} \quad (35)$$

where the volume integrations extend over all space, and

$t$  is the position on the escape trajectory, defined to start at the photo-absorption site,  $(\gamma, \theta, \phi)$ , and be directed towards the detector,

$\rho_A(r'(t))$  is the nuclear density at position  $t$  on the escape trajectory,

$\rho_{nl}(r)$  is the density of nucleons in the harmonic oscillator shell (nl) at radius  $r$ .

$\sigma_{NN}(T_n)$  is the cross section for a neutron of kinetic energy  $T_n$ , interacting with the residual (A-2) nucleus.

Ideally, the cross section,  $\sigma_{NN}$  governing the photonucleon absorption process should be taken as the sum of cross sections for reactions induced by the nucleon for the residual (A-2) system, except those for which the final state consists exclusively of the continuum nucleon and the (A-2) nucleus. Unfortunately, these cross sections are presently unavailable, so  $\sigma_{NN}$  is approximated with the  $^{40}\text{Ca}$  neutron reaction cross section<sup>8)</sup>.

Inclusion of the nucleon absorption process requires the  $(\gamma, pn)$  cross section to be scaled by  $\eta^2$ , and the  $(\gamma, N)$  cross section to be scaled by  $\eta$ . This treatment of the nucleon transparency implies the absorption processes for the neutron and proton are taken to be completely independent. Although such an approximation is commonly used<sup>4,10,11)</sup>, it is not strictly true. Clearly if one of the nucleons does not escape, the reaction  $Q$  must change, and the phase space in the final state will depend on the energies of the excited states in a different residual nucleus. However, within the present simplistic treatment, a more rigorous analysis of the available phase space for the absorption process is not warranted.

### 3.3 Results of the absorption correction

The probability that a photoneutron will escape the nucleus without being absorbed, or lost to a different reaction channel, is given by equation (35), and the neutron energy dependence is shown for various harmonic oscillator shells in Fig. 7. The results seem intuitively reasonable, with the probability of escape being isotropic, and greater for high nucleon energies and for valence orbitals. For the present calculation, the dependence on single-particle orbitals is more important than nucleon energy.

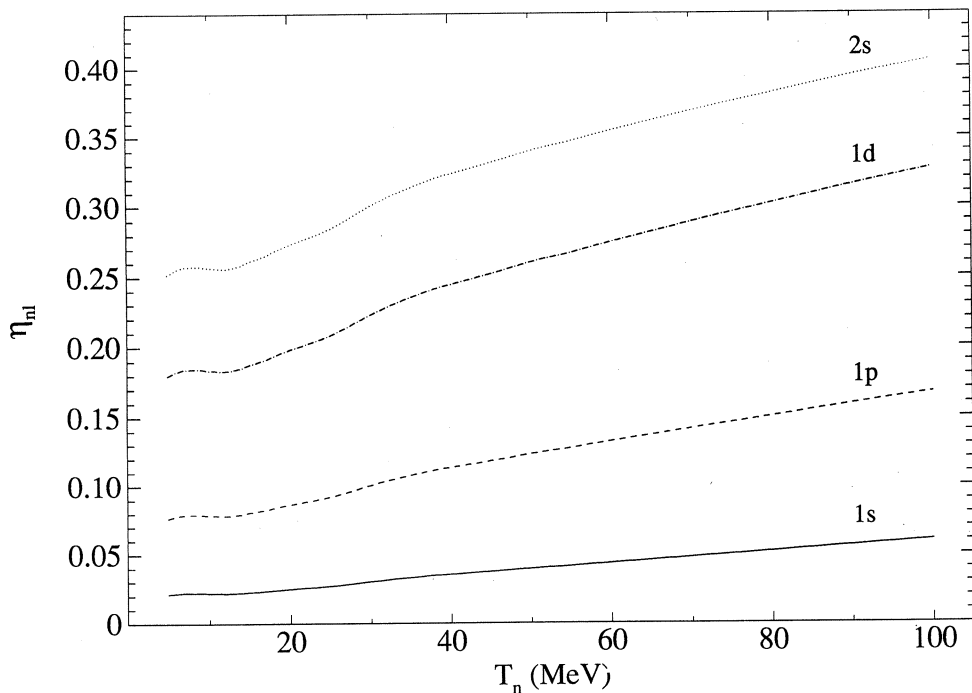


Fig. 7. Neutron transparency for specified harmonic oscillator shells.

#### §4. Conclusions

For final states where the direct reaction requires a very large pn-pair momentum, the direct term in the transition amplitude becomes very small. However, the surface refraction process offers a mechanism where pn-pairs with smaller momentum can contribute. In such cases the surface refraction process completely dominates the cross section, and the direct assumption is expected to be quite wrong. However, these same conditions of very large pair momenta render the approximation  $M_{\lambda\alpha} \sim M_{\lambda f}$  rather doubtful, and the Born approximation becomes unreliable. At low nucleon energies, additional problems are expected from the use of plane waves to represent the continuum photonucleons. Future calculations should seek primarily to avoid the use of plane waves. The calculation presented here is most likely to be accurate at large nucleon energies where the opening angle is near that at which the momentum density is maximum. At smaller photonucleon energies, the present results are numerically unreliable, but this stems principally from the intuitive result that the refraction process makes large alter-



ations to the internal (intermediate state) phase space available to any definite final state. There is a clear need for a better (distorted wave) treatment of the surface refraction process.

The importance of the nucleon refraction process in the inclusive ( $\gamma, n$ ) reaction is expected to be considerably less important. This follows directly from phase space considerations.

The neutron absorption correction is presented as a simple development of earlier treatments, and is shown to cause a depletion of the cross section by a factor dependent on both the neutron energy and, more importantly, on the bound-state orbital from which the nucleon is ejected.

### Acknowledgements

This work was supported by the Australian Research Grant Committee and the Department of Industry, Technology and Commerce. One of the authors (J. A. E.) was supported financially by a University of Melbourne Postgraduate Scholarship. Sincere thanks are extended to Dr. K. Amos and Dr. L. Berge for a number of helpful discussions.

### References

\*Present Address: The Institute for Theoretical Physics, Ruhr Universität Bochum D-463, Germany

- 1) K. Gottfried : Nucl. Phys. **5** (1958) 557.
- 2) J. A. Eden : Ph. D. thesis, The University of Melbourne, 1990, unpublished.
- 3) J. L. Matthews : M. I. T. Laboratory for Nuclear Science, Internal Report 112 (1967), (unpublished).
- 4) H. Schier and B. Schoch : Nucl. Phys. **A229** (1974) 93.
- 5) J. A. Eden, G. J. O'Keefe, R. P. Rassool, D. J. McLean, T. Suda, I. Nomura, J. Yokokawa, O. Konno, T. Terasawa and Y. Torizuka : Paper submitted for publication in Phys. Rev. C. (1991).
- 6) C. M. Perey and F. G. Perey : Atomic Data and Nuclear Data Tables **17** (1976) 1.

- 7) K. A. Brueckner, R. Serber and K. M. Watson : Phys. Rev. **84** (1951) 258.
- 8) H. S. Camarda, T. W. Phillips and R. M. White : Phys. Rev. **C34** (1986) 810.
- 9) S. Fernbach, R. Serber and T. B. Taylor : Phys. Rev. **75** (1949) 1352.
- 10) P. D. Harty : Ph. D. thesis, The University of Melbourne, 1986.
- 11) T. Suda : Ph. D. thesis, Tohoku University 1987, unpublished, and private communication.
- 12) J. G. Zabolitzky and W. Ey : Phys. Lett. **76B** (1978) 527.

## Ⅱ. 放 射 化 学

# The Influence of Metal Ions in the Solvent to the Complex Formation of $^7\text{Be}$ Produced in Photonuclear Reaction

Hitoshi Shoji

*Department of Chemistry, University of Tsukuba,  
Tsukuba, Ibaraki Japan*

In the previous volume of this Research Report the author reported anomalously high complex yields of  $^7\text{Be}$  produced in the photonuclear reaction of  $^{12}\text{C}(\gamma, \alpha n)^7\text{Be}$  in tris- $\beta$ -diketonatocobalt(III) compared with other tris-type metal  $\beta$ -diketonates<sup>1)</sup>. For the confirmation of the additional effect in the wet chemical separation process,  $\text{Fe}^{3+}$  and  $\text{Co}^{2+}$  ions of high stability constants for the complex formation with the same ligand were added to the solvent in various concentrations. The addition of  $\text{Fe}^{3+}$  gave remarkable reducing effect to the complex yields of  $^7\text{Be}$  in irradiated tris-acetylacetonatocobalt(III) system, while the addition of  $\text{Co}^{2+}$  gave little effect. These facts imply the secondary additional formation of the  $^7\text{Be}$ -complex in the wet chemical separation process.

## §1. Introduction

Bremsstrahlung irradiation of metal complexes with organic ligands effectively produces high-energetic radio metal nuclide  $^7\text{Be}$  through  $^{12}\text{C}(\gamma, \alpha n)^7\text{Be}$  reaction from the nonmetallic  $^{12}\text{C}$  of the ligand, where the radio-beryllium was expected to form a labelled complex. In metal phthalocyanines<sup>2)</sup> and metal  $\beta$ -diketonates<sup>1)</sup> some portions of the  $^7\text{Be}$  were really found to be at the position of central metal atom of the complexes. In the latter system anomalously high complex yields of  $^7\text{Be}$  (35~70%) were obtained in tris- $\beta$ -diketonatocobalt(III) such as  $\text{Co}(\text{acac})_3$ ,  $\text{Co}(\text{dbm})_3$  and  $\text{Co}(\text{dpm})_3$  where acac, dbm and dpm mean acetylacetonato, dibenzoylmethanato and dipivaloylmethanato ligand, respectively, while in other metal acetylacetonates such as  $\text{Be}(\text{acac})_2$ ,  $\text{Al}(\text{acac})_3$  and  $\text{Cr}(\text{acac})_3$   $^7\text{Be}$  complex yields were in the region of 8~16%. In doping experiments where the drops of very weakly acidic solution of  $^7\text{Be}$  were added on to the unirradiated same kind of complex with the similar wet chemical treatment to the case of irradiated samples, only little

portion of  $^7\text{Be}$  (less than 2 %) was found in the complex fraction even under  $10^7$  Rad of  $^{60}\text{Co}$   $\gamma$ -ray dose. The doping experiment, however, was thought to be insufficient to confirm the behaviour of  $^7\text{Be}$  in the wet chemical process because there were no liberated ligands or no degraded complex molecules in the doping case which could be in the solution in the irradiation case. Therefore the additional complex formation was further checked for the irradiated sample by adding  $\text{Fe}^{3+}$  or  $\text{Co}^{2+}$  ions of high stability constants for complex formation with the ligand to the solvent in various concentrations, which might suppress the additional complex formation of  $^7\text{Be}$  if such reaction processes would exist after the dissolution of the sample.

## § 2. Experimental

### 2.1 Reagents

Tris-acetylacetonatocobalt(III) was purchased from Dojindo Laboratories which was subjected to the irradiation after elementary analysis. Other metal salts and solvents were of G. R. grade and were used without further purification. Active alumina was No. 1097 of Merck product.

### 2.2 Irradiation

The bremsstrahlung irradiation was performed in the electron linear accelerator at the Laboratory of Nuclear Science, Tohoku University. The detailed irradiation conditions were as in the followings. Max. energy of photon : 50Mev, average current :  $\sim 100 \mu\text{A}$ , irradiation time : 7 ~ 8 hr, irradiation temp.  $\sim 130^\circ\text{C}$ , and unconverted electrons were removed by a sweep magnet.

### 2.3 Separation Procedure

Each irradiated  $\text{Co}(\text{acac})_3$  sample was dissolved in the ice-cooled mixed solvent of chloroform and methanol (50 : 1 in volume) containing  $\text{Be}^{2+}$ ,  $\text{Be}(\text{acac})_2$  and  $\text{Co}^{2+}$  of 0.25 mM each and several concentrations of  $\text{Fe}^{3+}$ , or  $\text{Be}^{2+}$ ,  $\text{Be}(\text{acac})_2$  of 0.25mM each and several concentrations of  $\text{Co}^{2+}$  without  $\text{Fe}^{3+}$  ions. An aliquot of the solution was loaded onto the top of active alumina column and  $^7\text{Be}(\text{acac})_2$  and  $^7\text{Co}(\text{acac})_3$  were eluted with chloroform, while the same portion of the untreated solution was taken for comparison.

### 2.4 Activity Measurements

A Ge(Li) detector connected to a multichannel pulse height analyser was operated through a computer for the measurement of  $\gamma$ -spectra. The peak area in a  $\gamma$ -spectrum was used for the determination of each nuclide.

## § 3. Results and Discussion

The relations of  ${}^7\text{Be}$  complex yields to the concentrations of  $\text{Fe}^{3+}$  or  $\text{Co}^{2+}$  were shown together with the retention of  ${}^{58}\text{Co}$  in Fig. 1. As the increase of the concentration of  $\text{Fe}^{3+}$  added, the complex yield of  ${}^7\text{Be}$  rapidly fell to the intermediate plateau of 30~40%, while the addition of  $\text{Co}^{2+}$  gives little reducing effects to the  ${}^7\text{Be}$  complex yield. On the other hand, the retention of  ${}^{58}\text{Co}$  was constant in the range of 3~4% in all the cases.

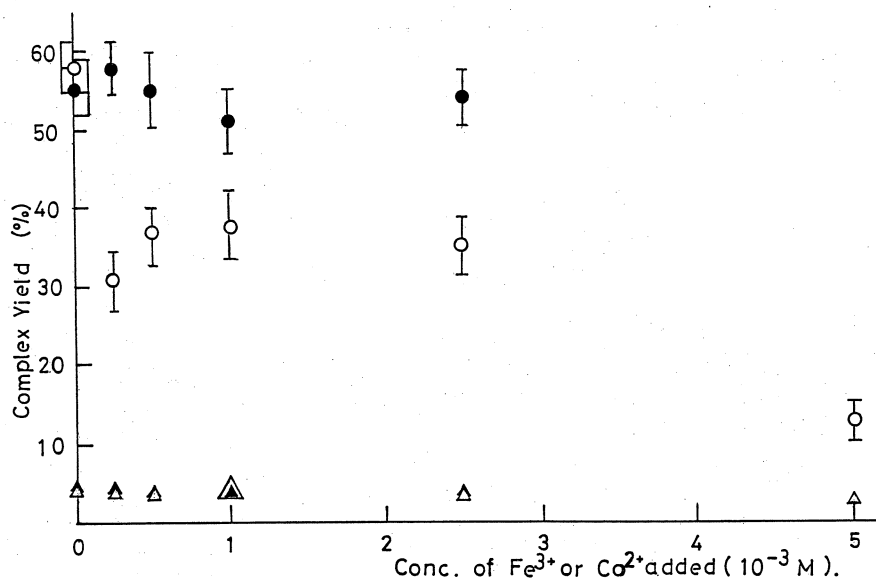


Fig. 1 The relation of  ${}^7\text{Be}$  complex yield to the concentration of  $\text{Fe}^{3+}$  or  $\text{Co}^{2+}$  added, together with the retention of  ${}^{58}\text{Co}$ . ○, ● :  ${}^7\text{Be}$  complex yield in the addition of  $\text{Fe}^{3+}$ ,  $\text{Co}^{2+}$ , respectively, △, ▲ :  ${}^{58}\text{Co}$  retention in the same order as above.

These results imply the existence of the process for the additional complex formation of  ${}^7\text{Be}$  after the dissolution. The anomaly of very high  ${}^7\text{Be}$  complex yields in  $\text{Co}(\text{acac})_3$  still remains even after the subtraction of this additional portion from the observed yield,

which is thought to be due to the some specific reaction process within the solid phase. For further analysis of this anomaly it would be effective to add  $\text{Fe}^{3+}$  or some other metal ions possible for forming a more stable complex than that of beryllium to the sample in the form of the frozen solution prior to the irradiation as T. Tominaga et al did in the study of the behaviour of the central metal atom recoil of metal  $\beta$ -diketonates<sup>3-6)</sup>, if a diluting solvent without containing  $^{12}\text{C}$  could be available.

### References

- 1) H. Shoji, Y. Maruyama, K. Ogawa, Y. Oki and N. Ikeda : Res. Rep. Lab. Nucl. Sci. Tohoku Univ. **18** (1985) 90 (in Japanese).
- 2) Y. Oki, H. Shoji, M. Aihara and N. Ikeda : J. Radioanal. Nucl. Chem., Lett. **106** (1986) 243.
- 3) T. Tominaga and K. Fujiwara : Bull. Chem. Soc. Jpn. **43** (1970) 2279.
- 4) T. Tominaga and Y. Nishi : Radiochem. Radioanal. Lett. **8** (1971) 151.
- 5) T. Tominaga and Y. Nishi : Radiocoem. Radioanal. Lett. **11** (1972) 289.
- 6) T. Tominaga and Y. Nishi : Bull. Chem. Soc. Jpn. **45** (1972) 3213.

# メタロセン・マトリックス中の反跳原子の挙動

理学部化学

松江秀明・関根 勉・吉原賢二

## §1. 序 論

メタロセンを用いたホットアトム化学研究はそのサンドウィッチ型と言う構造の特異さもあって、1951年のフェロセン発見<sup>1)</sup>直後の1958年には Sutin ら<sup>2)</sup>によって報告されている。さらに最近においては1989年に Blackburn ら<sup>3)</sup>によるフェロセン、ルテノセン、オスモセン（以下  $\text{FeCp}_2$ ,  $\text{RuCp}_2$ ,  $\text{OsCp}_2$ ）の熱中性子照射によるホットアトム化学についての精力的な報告もあり、現在でもこの分野の研究は非常に興味が持たれている。また、今まで我々は、Ⅲ価金属の  $\beta$ -ジケトン錯体について反跳インプランテーション反応を系統的に確認してきたが、全く構造の異なるメタロセンを対象とした場合、その対比として興味が持たれる。

そこでまず、空気中でも安定に取り扱うことのできる  $\text{FeCp}_2$ ,  $\text{RuCp}_2$ ,  $\text{OsCp}_2$  をターゲットに選び、 $(n, \gamma)$  反応による低エネルギー反跳原子（数十～数百eV）が得られる熱中性子照射から、 $(\gamma, n)$  反応による高エネルギー反跳原子（数十keV）が得られる制動放射線照射まで低温照射条件において実験をおこなった。本報告では、特にこれらの実験で得られた各生成同位体の各平均反跳エネルギーとそのリテンション値（反跳原子の化学形が親分子と同じである割合をさす）との関係を検討する。

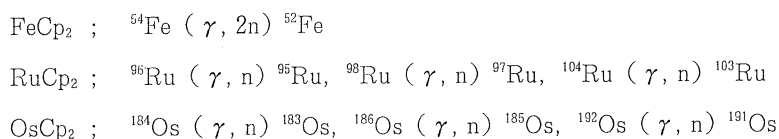
## §2. 実 験

照射実験に用いた試料は以下のように調製した。 $\text{FeCp}_2$  は和光純薬社製のものを昇華精製したものを用いた。 $\text{RuCp}_2$  は Pertici ら<sup>4)</sup> の報告に基づいて、三塩化ルテニウム水和物とシクロペンタジエンを亜鉛触媒存在下エタノール中で反応させ合成し、昇華精製して用いた。 $\text{OsCp}_2$  は  $\text{RuCp}_2$  とほぼ同様の方法で三塩化オスミウム水和物から合成し、昇華精製して用いた。照射にはこのようにして調製したメタロセンを結晶のまま約50mg用いた。

制動放射線照射は東北大学原子核理学研究施設の電子ライナックで得られる最大エネルギー50MeV の制動放射線を用いた。その際の電流値は約100  $\mu\text{A}$  で、未転換電子は掃引磁場によって除去した。また照射中は液体窒素で冷却した窒素ガスを試料に吹き付け-100～-130°Cに保って、約7時間の照射を行った。

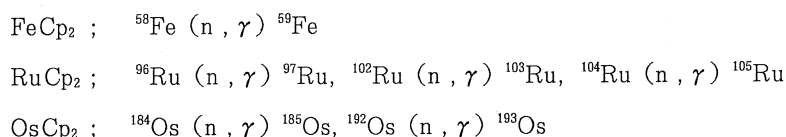


制動放射線照射で着目した核反応と生成する放射性同位体を次に示す。



熱中性子照射は、主として日本原子力研究所の JRR-2 原子炉（気送管，熱中性子束  $6.5 \times 10^{13} \text{cm}^{-2} \text{s}^{-1}$ ）を用いた。また同研究所の JRR-4 原子炉（気送管，熱中性子束  $3.7 \times 10^{12} \text{cm}^{-2} \text{s}^{-1}$ ）も利用した。照射は試料をドライアイスに埋没させたまま行い，照射時間は約 2 分間とした。

熱中性子照射で着目した核反応と生成する放射性同位体を次に示す。



なお照射試料は熱アニーリングによる二次的な効果を最小限に抑えるために化学処理までの間ドライアイス中に保存した。

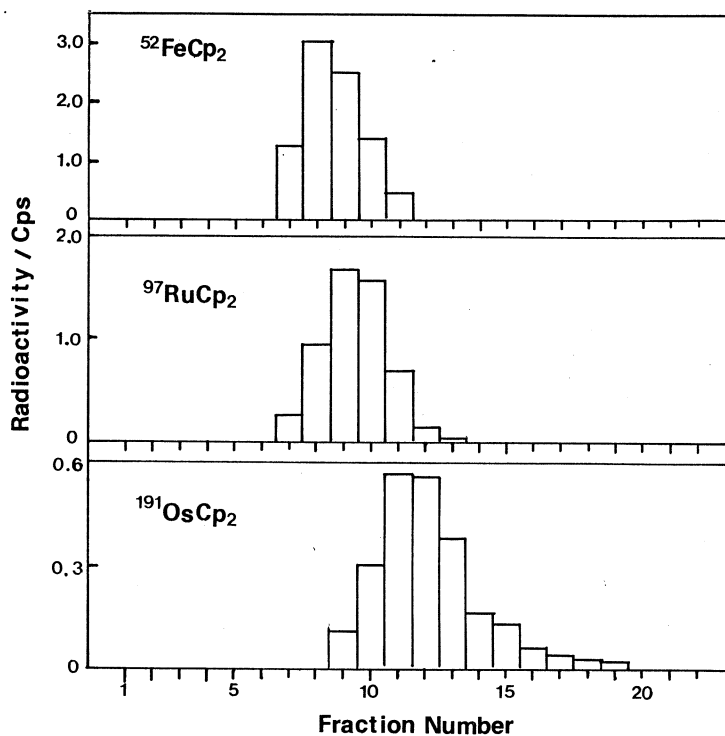
照射後の処理は次のように行った。照射試料をベンゼンに溶解し，シリカゲルカラム（和光純薬製，Wakogel-200）にチャージした後，ベンゼンでメタロセンを溶離した。化学処理後の放射能測定は Ge (Li) または pure Ge 半導体検出器と 4096 チャンネル波高分析器を用いて行った。リテンション値の評価は化学処理後の溶離部とシリカゲル部との形状を同一にし放射能を比較測定することで行った。この方法においてリテンション値は式 (1) で表される。

$$\text{リテンション (\%)} = \frac{\text{溶離部の放射能}}{\text{溶離部の放射能} + \text{シリカゲル部の放射能}} \times 100 \quad (1)$$

第 1 図には，制動放射線照射した試料のシリカゲルカラムクロマトグラムを示す。それぞれの放射能分布は，マクロ量のメタロセンの溶離挙動とよく一致し，メタロセン成分のみが良好に分離されていることがわかる。

### §3. 結果と考察

第 1 表に本研究で得られた各メタロセンの各核反応におけるリテンション値を示す。また表 1 に示す誤差は繰り返し実験による統計誤差を示したものである。FeCp<sub>2</sub> の場合，(n, γ), (γ, 2n) 反応でのリテンション値はそれぞれ 14.8% と 19.0% であった。RuCp<sub>2</sub> の場合，(n, γ) 反応では，生成同位体ごとに 10.6% から 12.3% の違いが見られた。<sup>103</sup>Ru の <sup>97</sup>Ru に対するリテ



第1図 制動放射線照射によるメタロセン照射試料のシリカゲルカラムクロマトグラム。着目した放射性同位体は次の核反応により生成したものである。上から、 $^{54}\text{Fe}(\gamma, 2n)^{52}\text{Fe}$ ,  $^{98}\text{Ru}(\gamma, n)^{97}\text{Ru}$ ,  $^{192}\text{Os}(\gamma, n)^{191}\text{Os}$ 。

第1表 メタロセンのリテンション値。

| Target      | Nuclear Reaction                            | Retention (%)  |
|-------------|---|----------------|
| Ferrocene   | $^{54}\text{Fe}(\gamma, 2n)^{52}\text{Fe}$  | $19.0 \pm 0.8$ |
|             | $^{58}\text{Fe}(n, \gamma)^{59}\text{Fe}$   | $14.8 \pm 0.1$ |
| Ruthenocene | $^{96}\text{Ru}(\gamma, n)^{95}\text{Ru}$   | $6.5 \pm 0.1$  |
|             | $^{98}\text{Ru}(\gamma, n)^{97}\text{Ru}$   | $6.6 \pm 0.1$  |
|             | $^{104}\text{Ru}(\gamma, n)^{103}\text{Ru}$ | $6.6 \pm 0.2$  |
|             | $^{96}\text{Ru}(n, \gamma)^{97}\text{Ru}$   | $10.6 \pm 0.1$ |
|             | $^{102}\text{Ru}(n, \gamma)^{103}\text{Ru}$ | $12.3 \pm 0.1$ |
| Osmocene    | $^{104}\text{Ru}(n, \gamma)^{105}\text{Ru}$ | $11.8 \pm 0.3$ |
|             | $^{184}\text{Os}(\gamma, n)^{183}\text{Os}$ | $1.6 \pm 0.2$  |
|             | $^{186}\text{Os}(\gamma, n)^{185}\text{Os}$ | $0.91 \pm 0.1$ |
|             | $^{184}\text{Os}(n, \gamma)^{185}\text{Os}$ | $5.8 \pm 0.1$  |
|             | $^{192}\text{Os}(n, \gamma)^{193}\text{Os}$ | $10.3 \pm 0.1$ |

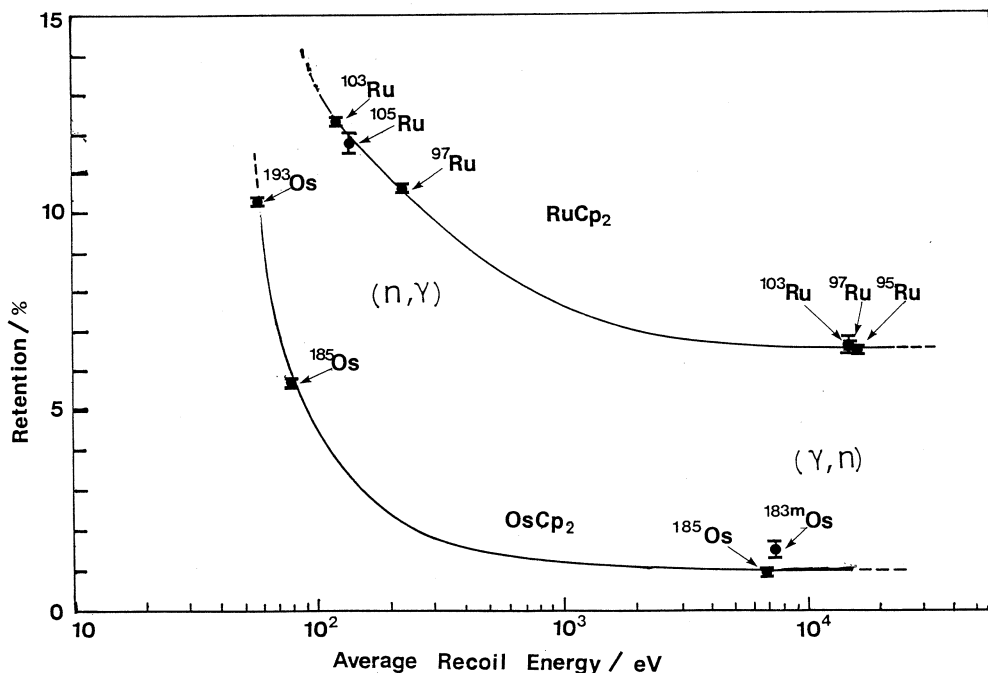
ンション値の同位体効果はパーセント表示で13.8%であった。同位体効果は式(2)で評価した。

$$\text{同位体効果}\% = \left( 1 - \frac{{}^{97}\text{Ruのリテンション}}{{}^{103}\text{Ruのリテンション}} \right) \times 100 \quad (2)$$

これとは対照的に( $\gamma, n$ )反応では3つの生成同位体いずれも6.6%で一定であった。OsCp<sub>2</sub>の場合、<sup>192</sup>Os( $n, \gamma$ )<sup>193</sup>Os反応のリテンション値が10.3%となり、<sup>184</sup>Os( $n, \gamma$ )<sup>185</sup>Os反応では5.8%となった。このように<sup>193</sup>Osに対する<sup>185</sup>Osのリテンション値の同位体効果((1 - <sup>185</sup>Os/<sup>193</sup>Os) × 100)はRuCp<sub>2</sub>の場合に比べても大きく43.7%であった。また( $\gamma, n$ )反応では1~2%程度のリテンション値が得られた。FeCp<sub>2</sub>の( $n, \gamma$ )反応によるリテンション値の文献値<sup>2)3)5)6)7)</sup>は照射条件によってばらついており10~40%の値が報告されている。しかし低温照射条件においては本研究で得られたリテンション値は妥当なものと思われる。RuCp<sub>2</sub>の( $n, \gamma$ )反応によるリテンション値の文献値<sup>3)8)</sup>は約10~14%程度であり<sup>97</sup>Ruと<sup>103</sup>Ruの同位体効果(本報告と同一の評価法)も11~13%と報告されている。これらの値は本研究と良い一致を示している。またOsCp<sub>2</sub>の( $n, \gamma$ )反応によるリテンション値の文献値<sup>3)</sup>は<sup>193</sup>Osで5.3%、<sup>185</sup>Osで9.8%である。この値も本研究と良い一致を示している。以下ではこれらの各生成同位体のリテンション値の大小関係とそれぞれの平均反跳エネルギーとの関係を中心に考察を進めていく。

まずRuCp<sub>2</sub>とOsCp<sub>2</sub>について核反応にともなう平均反跳エネルギーとリテンション値の関係を考察する。第2図には各核反応の平均反跳エネルギーに対して得られたリテンション値をプロットした。ルテニウムの( $n, \gamma$ )反応による平均反跳エネルギーのデータは松江ら<sup>9)</sup>のものを用いた。オスミウムの( $n, \gamma$ )反応の平均反跳エネルギーは質量過剰(mass excess)を用いた計算から最大反跳エネルギーを求め、その反跳エネルギー分布が<sup>102</sup>Ru( $n, \gamma$ )<sup>103</sup>Ruの反跳エネルギー分布<sup>10)</sup>に近いと仮定して平均反跳エネルギーを推定した。ルテニウムとオスミウムの( $\gamma, n$ )反応による平均反跳エネルギーはそれぞれ<sup>103</sup>Rhと<sup>197</sup>Auの放出中性子スペクトル<sup>11)</sup>から推定した。これらの平均反跳エネルギーの値は定性的な議論には十分に耐えうると考えられる。

第2図より( $n, \gamma$ )反応の反跳エネルギーの領域(100eV近傍)では明らかに反跳エネルギーの増大にともなってリテンション値の減少が見られる。また、同領域におけるその減少のしかたは、RuCp<sub>2</sub>よりもOsCp<sub>2</sub>の方に顕著な傾向が見られる。また( $\gamma, n$ )反応において得られる10keV近傍の反跳エネルギー領域に至っては前領域で得られたリテンション値よりもさら



第2図 RuCp<sub>2</sub> と OsCp<sub>2</sub> におけるリテンション値の平均反跳エネルギー依存性。

に小さい値を示すことが両ターゲットにおける共通点として認められるが生成同位体間でのリテンションの有意な違いは認められない。このようなリテンション値の反跳エネルギー依存性は、ホット原子が親分子から反跳エネルギー不足で飛び出ることが出来なかった居残り型のリテンションとホット原子が親分子から飛び出し他の分子と置換反応して親分子と同じ化学形になるホット置換反応との関係から説明出来る。また一たん、親分子から飛び出しても十分離れることが出来ず再び親分子に再結合するタイプも考えられるがこれは実際には居残り型タイプと区別が出来ない。(n, γ) 反応の反跳エネルギーの領域でのリテンション値の減少はこの居残りタイプのリテンションが反跳エネルギーの増加にともなって減少していく為と考えられる。また減少の割合は低反跳エネルギーになるほど大きいはずである。吉原ら<sup>12)</sup> によって報告された (γ, γ') 反応を利用した結果に基づき考察すると居残りタイプの成分は、約200eV以上の領域でなくなり、一方ホット置換反応は、約200~300eVで飽和値になりそれ以降の反跳エネルギーでは反跳原子の飛程が延びるだけでその最終段階の反応過程には変化がなくリテンション値の変化も見られなくなることが推定できる。

FeCp<sub>2</sub> においては、反跳エネルギーの大きいことの予想される (γ, 2n) 反応のリテンショ

ン値が  $(n, \gamma)$  反応によるそれを上回り、 $\text{RuCp}_2$ ,  $\text{OsCp}_2$  において見られた傾向とは異なった。 $\text{FeCp}_2$  の場合、上記 2 つの同位体についてのみの実験値の比較であるために実験的な系統性よりこの原因を特定することはできないが、以下の様な議論が可能である。 $^{58}\text{Fe}(n, \gamma)^{59}\text{Fe}$  反応時の  $^{59}\text{Fe}$  の反跳エネルギースペクトルは松浦ら<sup>10)</sup> によって計算されているがその際の平均反跳エネルギーは 325eV と比較的大きく、居残り型のリテンションはかなり小さな割合しか占めないことが推定される。すなわち、同じ  $(n, \gamma)$  反応の場合にも、他の分子をアタックして置換する反応が主となり、実験的により低い反跳エネルギー領域を実現できる Os, Ru の場合とは異なっている。また、Blackburn ら<sup>3)</sup> らはシリカゲルに  $\text{FeCp}_2$  または  $\text{RuCp}_2$  を吸着させた系で中性子照射を行いそのリテンションを求めているが、 $\text{RuCp}_2$  を吸着させた系ではリテンション値が見いだせるのに対し、 $\text{FeCp}_2$  系ではリテンションは認められなかった。このことは  $\text{FeCp}_2$  のリテンションはほとんどホット置換反応であり、シリカゲルで  $\text{FeCp}_2$  を分散させ、分子間の距離を離すことによってホット置換反応ができなくなり、リテンションが無くなったことを示している。このように  $\text{FeCp}_2$  の場合は  $(n, \gamma)$ ,  $(\gamma, 2n)$  反応ともにそのリテンション値がホット置換反応の成分のみによるのでそのリテンション値の変化は大きくないと推定される。

これまで、 $\text{FeCp}_2$ ,  $\text{RuCp}_2$ ,  $\text{OsCp}_2$  について平均反跳エネルギーとリテンションの関係について見てきた。これらの結果を総合すると 50eV 以上の反跳エネルギーとリテンションの関係が興味深い。まず  $\text{OsCp}_2$  と  $\text{RuCp}_2$  の  $(n, \gamma)$  反応の結果から低反跳エネルギーになるにつれ急激にリテンションが上昇していくことがわかる。これは、 $(\gamma, \gamma')$  反応を用いた実験<sup>12)</sup> で示された様に、ある反跳エネルギーのしきい値をもって中心金属がはずれ始め、またそのエネルギー領域が数十 eV 前後の値を与えることに対応している。また高エネルギーになるにつれリテンション減少の程度は低下し、 $\text{FeCp}_2$  の  $(n, \gamma)$  反応による結果から約 300eV 近辺でリテンションの減少は止まり後は一定になる。また 2 つのリテンション-反跳エネルギー曲線の形が似ていることから居残り型リテンションの成分は三種のメタロセンでほぼ一定であり、 $(n, \gamma)$  反応の領域でもメタロセン間のリテンションの違いはホット置換反応の成分に大きく支配されていると考えることができる。今の段階では定性的な議論に留まるがメタロセン間のリテンションの違いは、ホット置換反応のしやすさのようなメタロセンの化学的性質によるものであると考えられる。

沖ら<sup>13)</sup> は、亜鉛及びコバルトのフタロシアニン (Pc) 錯体の混晶での亜鉛の核反応に着目し、異なる平均反跳エネルギー系での  $\text{ZnPc}$  のリテンションについて調べた。この系において

も数百 eV の反跳エネルギー領域で急激なリテンション値の減少が見出され、その後一定となる傾向が得られており、本研究のメタロセンにおける傾向とよく似ている。現在さらに反跳エネルギーとリテンションにおける居残り型、そしてホット置換反応の成分との関連を明確にするためにメタロセン-シクロデキストリン包接体<sup>14)</sup>を用いて研究を行っている。この包接体とメタロセンとのホットアトム化学を比較することでさらに明確に反跳原子の挙動を捕らえることができると考えている。このテーマについて現在精力的に実験を進めているところである。

照射にあたってお世話いただいた東北大学核理研 榎本和義助手とマシングループの方々に御礼申し上げます。

## 参 考 文 献

- 1) T. J. Kealy and P. L. Pauson : Nature **168** (1951) 1039.
- 2) H. Sutin, W. R. Dodson : J. Inorg. Nucl. Chem. **6** (1958) 91.
- 3) R. Blackburn and T. Yassine : Radiat. Phys. Chem. **33** (1989) 336.
- 4) P. Pertici, G. Vitulli, M. Paci, L. Porri : J. Chem. Soc., Dalton Trans., (1980) 1961.
- 5) K. H. Lieser and Chr. Marcopoulos : Radiochim. Acta **26** (1975) 11.
- 6) T. Muto and H. Ebihara : J. Inorg. Nucl. Chem. **41** (1979) 1401.
- 7) W. Kanellakopoulos-Drosspulos and D. R. Wiles : Radiochim. Acta **16** (1971) 179.
- 8) G. Harbottle and U. Zahn : IAEA Symp. Chem. Eff. Nucl. Trans. (Vienna, 1965) Vol. II, p. 133.
- 9) H. Matsue, I. Kaneko, T. Sekine, K. Yoshihara : J. Radioanal. Nucl. Chem., Lett., **145** (1990) 271.
- 10) T. Matsuura and K. Sasaki : IAERU-8902-a
- 11) M. Barbier : " *Induced Radioactivity*" (North-Holland Pub. Comp., Amsterdam, 1969).
- 12) K. Yoshihara and H. Kudo : J. Chem. Phys. **52** (1970) 2950.
- 13) Y. Oki, H. Shoji, N. Ikeda : J. Radioanal. Nucl. Chem. Lett., **144** (1989) 89.
- 14) A. Harada, Y. Hu, S. Yamamoto and S. Takahasi : J. Chem. Soc., Dalton Trans, (1988) 729.

## 光量子放射化による高純度材料中のフッ素の分析

三菱マテリアル中研, 核理研\*, 金研\*\*

桜井宏行・深谷忠廣・川上 紀

佐山恭正・榎本和義\*・八木益男\*\*

### §1. 序

電子材料をはじめとする各種材料中に不純物として含まれる軽元素は、それら材料の特性に著しい影響を与えることが知られている。このため、これまで軽元素の高感度分析法の開発には大きな関心が寄せられてきた。特に、サイクロトロンや電子リニアックを利用する放射化分析はその高い感度を生かし、酸素、窒素、炭素などの検出、定量に活用されてきた<sup>1-4)</sup>。しかしながら、軽元素の中でもフッ素の分析例は少ない。

フッ素分析法としては蒸留分離後、アリザリンコンプレクソン法またはイオン選択性電極法により定量する方法が普及しており、最近ではイオンクロマトグラフ法による定量も行われている。しかし、これらの方法はサブ ppm レベルの品質管理を必要とする高純度材料の分析には適用できないという難点がある。

ところで、フッ素は中性子放射化や荷電粒子放射化では定量が難しいが、光量子放射化分析では $^{19}\text{F}(\gamma, n)^{18}\text{F}$ 反応で生成する半減期109.8分の $^{18}\text{F}$ からの陽電子壊変に伴う511keV 消滅放射線を検出することによりフッ素を高感度に分析できる<sup>5)</sup>。このため、光量子放射化法は材料中のフッ素の最も有力な分析手段となることが期待される。また、放射化分析では放射化後担体を加えて化学分離を行うことができるため、他の分析法に比べて回収率を正確に見積ることができるという特徴がある。そこで、本研究ではまず各種材料中のフッ素の分析のための基礎として、1) フッ素合成標準試料の調製法、および2) フッ素の蒸留分離から測定にいたる諸条件について検討を行った。

### §2. 実 験

#### 2.1 試薬および試料

試薬は全て特級以上のもの、酸は精密分析用を使用した。水は再蒸留して用いた。フッ素標準溶液はフッ化ナトリウムまたはカリウムを、550°Cで乾燥、恒量としたうえで精秤後、溶解して調製した。テトラエチルシリケートは多摩化学製のものを再蒸留して用いた。

分離, 分析条件検討のための標準試料には NBS SRM 91 Opal Glass (F=5.73%) を選び, 分析試料にはフッ素濃度 500~5000  $\mu\text{g/g}$  となるように調製した合成シリカゲル試料, Ti または Cl を含む石英ガラスを選んだ。

## 2.2 合成標準試料の調製法

ポリプロピレン製ビーカーにフッ化カリウムを一定量とり, 2 N 硝酸, テトラエチルシリケートを加え, ゲル化するまで攪拌した。ゲルは電子レンジで乾燥しながら粉末状とした後, さらに 500°C の電気炉中で一夜乾燥した。一回の合成量は 10g とした。

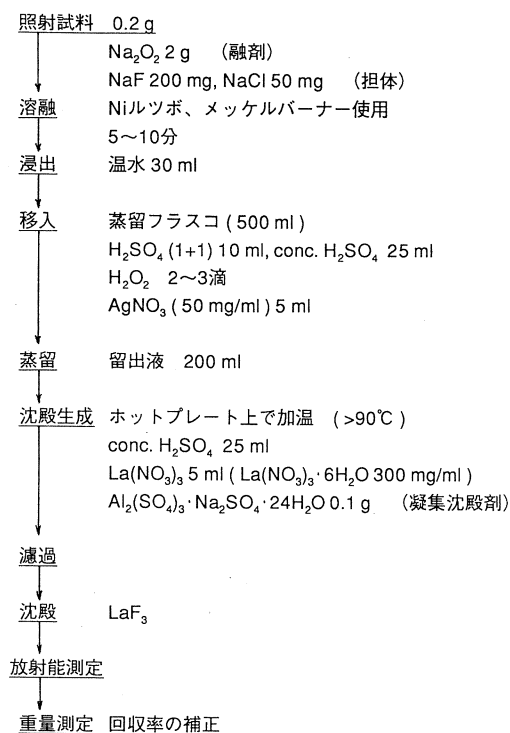
## 2.3 照射

試料は 100~200mg を, 厚さ 10  $\mu\text{m}$  の純アルミニウム箔で包装し, 直径 10mm のディスク状に成型した。各試料は照射線束モニターの Ni 箔とともに照射用石英管内に並べ封入の後, 水冷照射ホルダー内の Pt コンバーター後方 3~5 cm の位置に固定した。電子加速エネルギー 30MeV, 平均電流約 100  $\mu\text{A}$  の電子線を Pt コンバーターで制動放射に変換し, 1 時間照射した。

## 2.4 化学分離

分離操作は第 1 図に示した。照射後, 試料をニッケルするつばに移し, 担体の NaF, NaCl, 融剤の  $\text{Na}_2\text{O}_2$  を加えて溶融した。試料は温水で浸出して蒸留フラスコに移し,  $\text{H}_2\text{SO}_4$  (1+1) で中和後, 濃  $\text{H}_2\text{SO}_4$  を加え, さらに数滴の  $\text{H}_2\text{O}_2$  水を加えた。つぎに, 遊離塩素をフラスコ内に保持するため  $\text{AgNO}_3$  を添加し, 蒸留を開始した。留出液 200ml は  $\text{HNO}_3$  で酸性にしたうえで,  $\text{La}(\text{NO}_3)_3$  を添加して蒸留分離されたフッ素を  $\text{LaF}_3$  として沈殿させた。生成した沈殿はあらかじめ秤量した直径 35mm の濾紙上に均一に集めた。濾紙はポリエチレン袋に入れ, ポリエチレンシャーレ内に固定して測定用試料とした。

フッ素の回収率は, 放射能測定終了後,



第 1 図 化学分離スキーム。



濾紙を乾燥し秤量して求めた。

## 2.5 放射能測定

$^{18}\text{F}$ からの陽電子壊変に伴う511keV消滅放射線の測定はOrtec社製Pure Ge検出器（分解能；1.9keV，相対効率；30%）をNAIG製EシリーズMCAに接続して行った。試料の連続、繰り返し測定のために、マイクロロボットによる自動測定を利用した<sup>6)</sup>。測定は約半日にわたり継続した。

試料と同時に照射したNi箔は、1日後その $^{57}\text{Ni}$ の生成量を測定した。照射線束の変化をコンバーターからの距離の関数として求め、試料に照射された線束の補正を行った。

## §3. 結果と考察

### 3.1 合成試料の調製

フッ素の定量法を確立するうえで、低濃度のフッ素を含み、しかもその濃度が正確に求められた標準試料は不可欠であるが、現在そのような試料を手に入れることはできない。そこで、本研究では標準試料の合成を試みることにした。

まず、蛍光X線分析の試料調製に利用されるガラスビード法による調製を試みたが、ブランク値が大きく標準として使用できなかつた。また、高純度シリカゲルにフッ化物粉末を加え、乳鉢中で混合する方法では均一なものを作ることは非常に難しいことが分かった。そこで、フッ化物に希硝酸を加えて溶解後、テトラエチルシリケートを加えてゲル化させ、乾燥し粉末状試料として調製する方法<sup>7)</sup>を検討した。濃度が正確であるためには、合成中にフッ素の飛散がないこと、汚染がないことが不可欠である。以下に、それらの検討結果について述べる。

まず、ゲルの乾燥条件について検討した。電子レンジで乾燥し、それをさらに電気炉中で200、300、400、500°Cで1時間乾燥した場合についてフッ素の損失を調べ、その際の重量減少を200°Cでの重量を1として求めた結果とともに第1表に示した。乾燥温度が高くなるにつれて合成試料A、Bとも同じ割合で減少していることが分かる。また、500°Cで乾燥時間を0.7～3.2時間に変えたときの重量は0.5%以内で一致し、約1時間で恒量に達することを確かめた。シリカゲルはKFを溶解し固化したもので、それぞれの試料を同時に照射し生成する $^{18}\text{F}$ からの511keV  $\gamma$ 線を化学分離せずに測定した。第1表の比放射能は壊変、照射線束および乾燥減量を全て同一条件に補正した511keV  $\gamma$ 線ピーク計数値(cps/mgSiO<sub>2</sub>)として示したものである。合成試料Aはフッ素濃度が約4500  $\mu\text{g/g}$ 、合成試料Bは約500  $\mu\text{g/g}$ となるように調製したものであり、生成比放射能も濃度に比例していることが分かる。 $^{18}\text{F}$ の比放射能は合成

試料 A, B ともに200~500°Cで数%以内で一致しており, この温度範囲内でフッ素の損失は認められなかった。

第1表 シリカゲル合成試料調製での焼成温度の影響(1)。

| 温度 (°C) | 合成試料A |           | 合成試料B |             |
|---------|-------|-----------|-------|-------------|
|         | 重量変化  | 比放射能*     | 重量変化  | 比放射能*       |
| 200     | 1     | 8.91      | 1     | 1.072       |
| 300     | 0.977 | 9.02      | 0.974 | 1.006       |
| 400     | 0.956 | 9.23      | 0.961 | 1.055       |
| 500     | 0.935 | 8.91      | 0.941 | 1.048       |
|         |       | 9.02±0.15 |       | 1.045±0.028 |

\* cps/mg SiO<sub>2</sub>

同様の実験をより精度良く確かめるために, 内標準法による検討を行った。すなわち, 上記試料と同様に KF を溶解して調製する際, 同時に Mg 標準溶液を一定量添加し, ゲル化させた。放射能測定は非破壊で行い, フッ素からの <sup>18</sup>F (511KeV) と Mg から <sup>25</sup>Mg (γ, p) <sup>24</sup>Na 反応で生成する <sup>24</sup>Na (1368keV) のピーク面積比として求めた。第2表には200°Cでの放射能比と各温度での放射能比の比として求めた結果を示した。また, 第1表と同様重量変化も示した。

第2表 シリカゲル合成試料調製での焼成温度の影響(2)。

| 温度 (°C) | 合成試料C |             | 合成試料D |             |
|---------|-------|-------------|-------|-------------|
|         | 重量変化  | 放射能比        | 重量変化  | 放射能比        |
| 200     | 1     | 1           | 1     | 1           |
| 300     | 0.970 | 1.038       | 0.971 | 1.007       |
| 400     | 0.945 | 1.004       | 0.953 | 1.011       |
| 500     | 0.929 | 1.044       | 0.936 | 1.009       |
|         |       | 1.022±0.023 |       | 1.007±0.005 |

合成試料 C, D はそれぞれフッ素濃度  $6000 \mu\text{g}/\text{g}$  および  $1200 \mu\text{g}/\text{g}$  となるように調製したものである。重量変化は合成試料 A, B とほとんど同じ傾向を示しており、試料は再現性良く調製できることが分かる。本法では試料中に含まれる F と Mg からの生成放射能の比をとるため、シリカゲルの乾燥減量や照射線量の補正が一切不要となる。そのため、もし内標準である Mg が飛散しないとすれば、フッ素の損失をより正確に評価できることになる。各温度での結果は合成試料 C, D とともに 2% 以内で一致しており、フッ素の損失はなく Mg とともにシリカゲル内に均一に保持されていることが分かる。

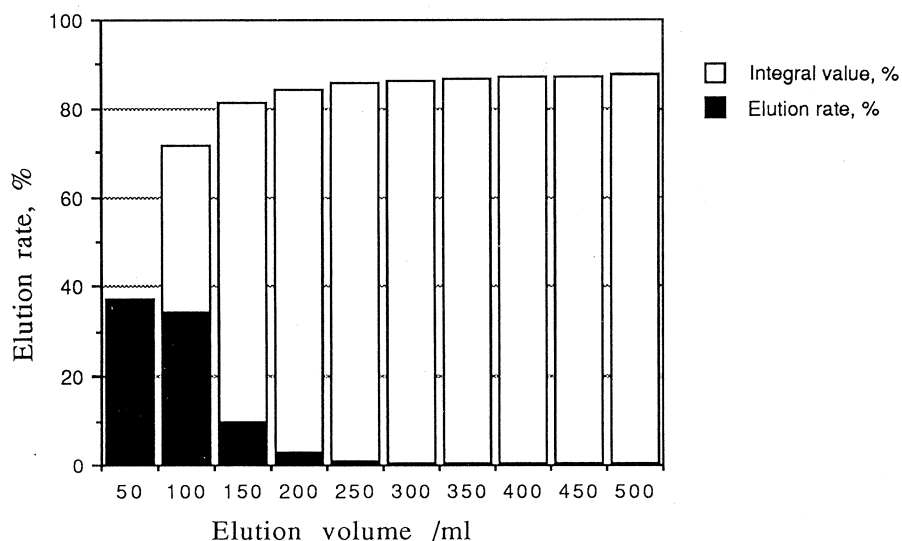
つぎに、フッ素の汚染を確かめるためブランクテストを実施した。テフロンビーカー、攪拌用テフロン回転子を試料調製に使用した場合、ブランク試料の  $511\text{keV}$   $\gamma$  線強度の経時変化は  $^{18}\text{F}$  のそれと等しく、フッ素濃度は  $140 \mu\text{g}/\text{g}$  という高い値を示し、著しいフッ素の混入があることが分かった。テフロン器具は微量分析用に活用されているが、その際フッ素の解離、テフロン微粒子の混入に注意が必要であるといえる。また、テフロンの代わりにポリプロピレン製の器具を使用した場合、 $511\text{keV}$   $\gamma$  線強度は著しく弱くなった。 $511\text{keV}$   $\gamma$  線強度の経時変化は半減期が十数分、数時間、十時間以上のおよそ 3 成分からなる減衰曲線を示した。短半減期のものはテトラエチルシリケートに起因する炭素からの  $^{11}\text{C}$ 、硝酸に起因する窒素からの  $^{13}\text{N}$  によるものと予想される。 $511\text{keV}$   $\gamma$  線だけで元素を同定することは難しいが、照射後 3~6 時間の  $511\text{keV}$   $\gamma$  線強度を全て  $^{18}\text{F}$  によるものとして求めたフッ素濃度は  $4.2 \mu\text{g}/\text{g}$  となり、フッ素の汚染がかなり除かれることが確認された。以上は非破壊分析の結果であり、フッ素のみを化学分離して定量すればさらに小さい値となると期待される。以上の結果から、ゲル化から電子レンジでの乾燥まではポリプロピレン製容器を使用することにした。また、電気炉での乾燥には耐熱ガラスビーカーを使用した。

### 3.2 分離条件の検討

$^{18}\text{F}$  は  $511\text{keV}$   $\gamma$  線のみを放出するため、元素の正確な同定を行うには試料からフッ素を分離することが不可欠である。本実験では試料をアルカリ融解後、JIS K0102 に従い蒸留分離を行うことにした。

石英試料に相当量の NaF を添加後、融解し、蒸留分離を行った。留出液は  $50\text{ml}$  のフラクション毎に、計 10 回分取した。各フラクションのフッ素濃度はイオン電極法により測定した。第 2 図に結果を示す。

棒グラフの黒の部分は各フラクションの留出量を % で表したもので、白はその積算値である。最初のフラクションの留出率が最も高く 37% で、順に減少している。積算値は  $200\text{ml}$  まで急激



第2図 蒸留留出液量とフッ素留出率の関係。

に増加し、フッ素の85%が回収される。200~500mlでの積算値は85~87%まで漸近的に増加する。このため留出液の回収量は200mlとした。

実際の分析試料には塩素も含まれており、フッ素と一緒に蒸留されてしまう。塩素からは光量子放射化で半減期32.0分の $^{34m}\text{Cl}$ が生成し、同じ511keV  $\gamma$ 線を放出するため妨害となる。そこで、保持担体としてNaClを加え、さらに $\text{AgNO}_3$ を添加して、蒸留フラスコ内に $\text{AgCl}$ として沈殿させることにした。蒸留後、フラスコから $\text{AgCl}$ を回収しその重量をはかったところ、90%以上が保持されていることが分かった。

また、留出液中のフッ素は $\text{LaNO}_3$ を添加し、 $\text{LaF}_3$ として沈殿分離する。第3表に沈殿生成条件の検討結果を示す。硝酸の添加量が少なくなるにつれ回収率は向上するが、沈殿が細かくなり濾過の際目詰まりを起こすことになる。表より硝酸添加量は2mlとした。

以上の検討により、石英試料中のフッ素を第1図のスキームによって分離することにした。照射直後から測定までの全操作に約1時間が必要であった。

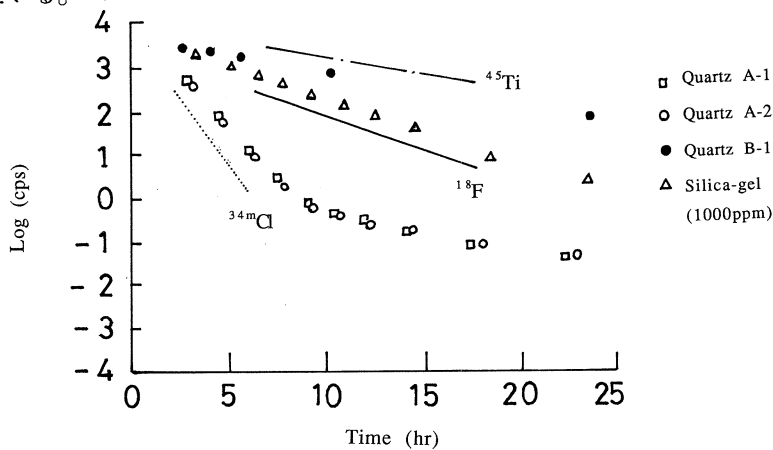
化学分離の効果を確かめるた

第3表  $\text{LaF}_3$ 沈殿生成、分離に与える硝酸添加量の影響。

| $\text{HNO}_3$ 添加量<br>ml | 回収率<br>% | 濾過時間<br>min |
|--------------------------|----------|-------------|
| 5                        | 78       | 2           |
| 4                        | 82       | 2           |
| 3                        | 88       | 2           |
| 2                        | 97       | 2           |
| 1                        | 99       | 50          |

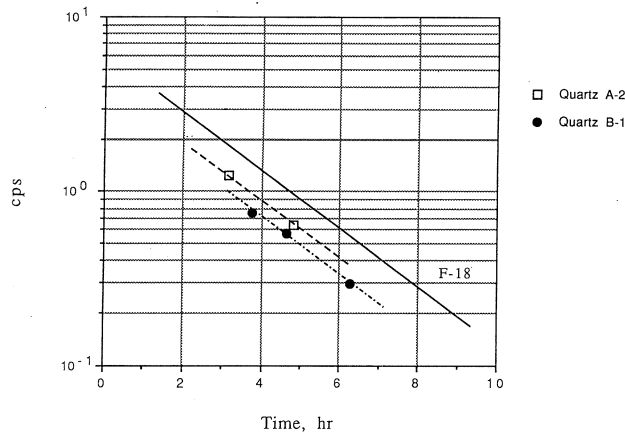
め、第3図に非破壊測定での511keV  $\gamma$ 線強度の減衰曲線、第4図に化学分離後の減衰曲線を示した。

第3図の石英A-1, 2は塩素を含む試料で、照射後6時間まで $^{34m}\text{Cl}$ の減衰を示しており、10時間以降は $^{18}\text{F}$ より長い半減期の成分があることが分かる。このためこの曲線から $^{18}\text{F}$ の成分を分離解析することはできない。石英BはTiを含む試料であり、照射後1日まで $^{45}\text{Ti}$ の減衰曲線にのっていることが分かる。この場合も非破壊分析によるフッ素の定量は困難である。同時にフッ素を1000ppm含む合成試料も示したが、この試料では照射後1日まで $^{18}\text{F}$ の減衰曲線にのっている。



第3図 非破壊石英試料からの511keV  $\gamma$ 線の減衰曲線。

第4図は、石英Aと石英Bの蒸留分離後の減衰曲線で、 $^{18}\text{F}$ の減衰曲線とともに示した。両試料とも $^{18}\text{F}$ の減衰と完全に一致しており、放射化学的純度良く $^{18}\text{F}$ が分離できたことを示している。



第4図 化学分離後の石英試料からの511keV  $\gamma$ 線の減衰曲線。

### 3.3 フッ素の定量結果

本実験では NBS SRM Opal Glass を比較標準試料としてフッ素の定量を実施した。定量結果を第 4 表に示す。合成試料 E, F の計算値は、最初に加えたフッ素の量を生成したシリカゲルの量で割った値である。参考のため石英試料はアルカリ溶融後、イオン電極法での分析も行った。合成試料 E, F と石英 C はフッ

第 4 表 合成試料および石英試料中のフッ素の定量結果。

| 試料名    | 定量値  | 参考値               |
|--------|------|-------------------|
| 合成試料 E | 1100 | 1100 <sup>+</sup> |
| 合成試料 F | 500  | 520 <sup>+</sup>  |
| 石英 A   | 2.5  | <100 <sup>*</sup> |
| 石英 B   | 2.7  | <100 <sup>*</sup> |
| 石英 C   | 1100 | 1000 <sup>*</sup> |

+ ; 計算値,

\* ; アルカリ溶融-イオン電極法による分析値。

素を高い濃度で含んでおり、定量結果は計算値やイオン電極法の値とも良く一致している。石英 A と石英 B はそれぞれ Cl や Ti を含む試料で、イオン電極法では定量することができなかったが、本法ではフッ素が数 ppm 含まれていることを確認することができた。本法での定量下限は 0.6ppm で、ppm レベル以下のフッ素が定量できることが分かった。

## § 4. まとめ

フッ素の保証値が示された標準試料は NBS Opal Glass のみであることから、これを本実験での比較試料として定量を行った。しかし、実際の分析試料に比べて数万倍も高濃度であるため適当ではない。本実験で検討したシリカゲル合成標準試料は必要とする濃度の試料を容易に調製でき、しかも均一性に優れブランクも低いことから、ppm レベルの標準試料調製に適していることが分かった。

本実験では化学分離法として水蒸気蒸留法と沈殿分離法を採用した。本法は JIS 法として利用されており、本実験でも 85% の回収が可能であった。また、最終的に LaF<sub>3</sub> として沈殿分離することにより、放射化学的純度良く分離できていることが確かめられた。また、沈殿を濾紙で捕集した結果、試料が測定に適した形状になるとともに、全ての試料を同じジオメトリーで扱えるため、測定時の検出効率が向上し誤差を小さくすることができた。今後はルーチンでの分析を行うため、蒸留法に比べて迅速、簡便性に優れるパイロハイドロリシスによる分離を検討する予定である。

以上、本実験ではフッ素の光量子放射化分析について基礎検討を行い、光量子放射化と化学

分離を併用することにより、従来法では定量できないサブ ppm レベルのフッ素を定量できることを示すことができた。

### 参 考 文 献

- 1) C. Engelmann : *Advances in Activation Analysis*, eds. J. M. A. Lenihan, S. J. Thomson and V. P. Guinn (Academic Press, London 1972) p. 1.
- 2) E. Ricci : *Advances in Activation Analysis*, eds. J. M. A. Lenihan, S. J. Thomson and V. P. Guinn (Academic Press, London 1972) p. 221.
- 3) Ch. Segebade *et al.* : *Photon Activation Analysis* (Walter de Gruyter, Berlin, 1988) p. 221.
- 4) C. Vandecasteele : *Activation Analysis with Charged Particles* (Ellis Horwood, Chichester, 1988) p. 85.
- 5) C. Segebade, M. Kuhl, B. F. Schmitt, R. Neider : *J. Radioanal. Chem.* **78** (1982) 665.
- 6) M. Yagi, K. Masumoto, M. Muto : *J. Radioanal. Nucl. Chem.* **98** (1986) 31.
- 7) J. W. Mitchel, L. D. Blitzer, T. Y. Kometani, T. Gills, L. Clark, Jr. : *J. Radioanal. Chem.* **39** (1977) 335.

## ザクロ石の微量元素組成

教養部, 理学部地学\*

吉田武義・青木謙一郎\*

### §1. はじめに

ザクロ石固溶体の組成は多様であるが<sup>1)</sup>, 通常のザクロ石はパイロープ ( $Mg_3Al_2Si_3O_{12}$ ), アルマンディン ( $Fe^{2+}_3Al_2Si_3O_{12}$ ), スペサルティン ( $Mn_3Al_2Si_3O_{12}$ ), グロシュラール ( $Ca_3Al_2Si_3O_{12}$ ), アンドラダイト ( $Ca_3Fe^{3+}_2Si_3O_{12}$ ), そしてウヴァロヴァイト ( $Ca_3Cr_2Si_3O_{12}$ ), の六つの端成分で表わすことができる。ザクロ石固溶体はこれらすべてが連続的に固溶しているわけではなく, スペサルティン-アルマンディン系, パイロープ-アルマンディン系, そしてグロシュラール-アンドラダイト系に大別できる。前二者を併せてパイラルスパイト, グロシュラール-アンドラダイト系をグランダイトと呼ぶこともある。

スペサルティン成分に富むザクロ石は比較的低温で安定であり, 結晶片岩やペグマタイト, そしてマンガン鉱床などに産する。一方, アルマンディン成分に富むザクロ石は, 比較的高温, 低圧下で安定であり, そのような条件下で生じた結晶片岩や片麻岩などに認められるとともに, 一部の花崗岩, ペグマタイトそして珪長質火山岩などにも含まれる<sup>2)</sup>。また, 苦鉄質火成岩起源の角閃岩などにも含まれることがある。パイロープ-アルマンディン系ザクロ石にはかなりのグロシュラール成分を固溶し得る。パイロープ成分に富んだザクロ石がマントル起源のカンラン岩やエクロジャイト, シャーノッカイトといった岩石や高圧型変成岩中に認められる。特にザクロ石カンラン岩はダイヤモンドの母岩としてキンバライト中に産し, 上部マントルを構成する代表的な岩石であると考えられている<sup>3)</sup>。従って, パイロープは上部マントルを構成する最も主要な造岩鉱物の一つである。グロシュラール-アンドラダイト系ザクロ石は石灰質変成岩やスカルン中にしばしば含まれる。その一部には,  $Si^{4+}$ がぬけ, さらに電荷を中和するように  $4O^{2-}$ を  $4(OH)^-$ が置き換えたヒドログロシュラールと呼ばれるものがある。これは石灰質堆積岩が変成作用をうけてできた岩石や, 低温で変質~変成した超苦鉄質~苦鉄質岩などに認められる<sup>4)</sup>。

このように, ザクロ石は種々の成因で生じた幅広い組成の岩石中に産している。これらの種々のザクロ石がそれぞれどのような主要ならびに微量元素組成を有しているかを明らかにすることは, 地球化学的に大変興味深い。今回各種の火成岩中に含まれるパイロープ-アルマンディン



系ザクロ石について、光量子放射化法などにより主要ならびに微量成分元素を分析したのでここに報告し、その地球化学的特徴について若干の考察を行う。

## §2. 分析試料について

今回分析したパイロープーアルマンディン系ザクロ石は大きく2つのグループに大別できる。一つは地殻を構成する岩石からのものであり、もう一つはマントル構成岩からのザクロ石である。これらのうち、地殻を構成する岩石からのザクロ石は、珪長質火山岩中の斑晶、グラニュライト、ならびに地殻性エクロジャイトに由来するものからなり、一方、マントル構成岩からのザクロ石は、キンバーライト中のメガクリスト、マントル性エクロジャイト、ザクロ石レーズライト、そしてザクロ石ハルツバージャイトに由来するものからなる。各岩石の特徴は以下の通りである。

### 1. 珪長質火山岩中の斑晶

ザクロ石含有黒雲母デイサイト（愛媛県温泉郡川内町，黒森峠北西方）。石鎚山第三系，石鎚層群最下部層，高野累層に属するザクロ石含有黒雲母デイサイト質火砕流堆積物<sup>5)</sup>中のデイサイト質岩片に由来する。斑晶鉱物としてはザクロ石の他に，斜長石，石英，黒雲母を含む。

ザクロ石含有普通角閃石デイサイト（福島県伊達郡霊山町掛田川字山野川）。加納・八島<sup>6)</sup>によると，中新統最下部，霊山層の上部に活動したと推定され，溶岩ドーム状の産状を示す。斑状組織を呈し，斑晶として普通角閃石と斜長石が認められるが，ザクロ石の含有量は0.01%以下である。普通角閃石はオパサイト化し，内部は方解石や緑泥石などで置換されている。石基は毛氈状組織を呈し，ガラスの他に，斜長石，アパタイト，ジルコン，磁鉄鉱などを含み，二次鉱物として方解石，スフェン，緑泥石，絹雲母，鉄サポナイトなどを生じている。

### 2. グラニュライトと地殻性エクロジャイト

グラニュライトはアメリカ，ユタ州の Moses Rock Dyke のキンバーライトの捕獲岩から，また地殻性エクロジャイトはユタ州，Moses Rock Dyke のキンバーライトとアリゾナ州の Chino Valley のレータイト中の捕獲岩から得られた。ナバホ地域のユターアリゾナ州境付近には約2500万年前に貫入した数個のキンバーライトが産出し，これらは径数 cm 以下の大きさのマントル起源のカンラン岩と共に下部地殻由来の種々の苦鉄質変成岩捕獲岩を伴う。グラニュライト（MR-18）は斜長石，普通角閃石とザクロ石から成り，黒雲母，白黒母，緑廉石，チタン鉄鉱，アパタイトなどを伴い，一方，エクロジャイト（MR-21）は主としてザクロ石と単斜輝石から成り，白雲母とルチルを伴う。アリゾナ中部の Chino Valley において，約2500万

年前に活動した Sullivan Buttes レータイトには径20 cm から 1 mm 以下, 平均 5 cm の多量のザクロ石を含む苦鉄質捕獲岩が認められる。エクロジャイト (CV-04) は主として単斜輝石とザクロ石から成り, 少量のルチルとアパタイトを伴う。

3. マントル起源メガクリスト, エクロジャイトと, レールゾライト~ハーツバージャイト  
南アフリカ連邦キンバーレー地域とレソトには8000万年~1億5000万年前にキンバーライトが活動しており, これはキンバーライト・マグマから結晶した種々のメガクリストや上部マントルを構成しているザクロ石カンラン岩 (レールゾライト~ハーツバージャイト), エクロジャイトや輝岩の捕獲岩を含む。ザクロ石メガクリストは径 2 cm, キンバーレーの Frank Smith (FS-02 と FS-05) と Bells Bank (BB-01) から採集した。エクロジャイト (FS-08) はザクロ石とオンファサイトから成る。ザクロ石レールゾライトとハーツバージャイトはそれぞれキンバーレーの Bultfontein Floors (BF-10) とレソトの Liphobong (LI-03) から採集したものをを用いた。ザクロ石レールゾライトとハーツバージャイトは共にグラニューラー型であり, 初生鉱物はザクロ石, フォルステライト, エンスタタイトと透輝石であるが, Bultfontein Floors のものはカリの交代作用により約 4% の金雲母と微量のクロム鉄鉱が生成している。

### §3. 試料の分析方法ならびに分析結果

以上のザクロ石について, 湿式ならびに EPMA 分析法により主成分元素の分析を行い, さらに, 光量子放射化法を用いて, Ba, Ce, Co, Cr, Cs, Nb, Ni, Rb, Sc, Sr, Zn, Zr および Y の 13 微量成分元素の分析を行った。試料の放射化には東北大学原子核理学研究施設の電子ライナックを利用し, 30 MeV の加速電子を用いた。照射試料からの  $\gamma$  線スペクトルの測定は核理研の RI 測定室において行ない, 得られたスペクトルデータからの定量計算は東北大学教養部地学科において行った<sup>7)</sup>。得られた分析結果を第 1 表に示す。

### §4. 主成分組成上の特徴

今回分析したザクロ石は大きく地殻起源のものとマントル起源のものからなるが, これらの間には明瞭な組成上の違いがあり, 前者はアルマンディンザクロ石であり, 後者はパイロープザクロ石である (第 1 図)。地殻起源のザクロ石においては, エクロジャイトから, グラニューライト, 珪長質火山岩中の斑晶へとアルマンディン成分が増加し, それに伴いスペサルテイン成分も僅かながら増加する傾向が認められる。一方, マントル起源のザクロ石については, ザ

第1表 ザクロ石の主要成分ならびに微量成分組成。

|                                | 1      | 2      | 3     | 4     | 5     | 6*     | 7*    | 8*    | 9     | 10     | 11     |
|--------------------------------|--------|--------|-------|-------|-------|--------|-------|-------|-------|--------|--------|
| Sp. No.                        | IS-01  | RY-01  | CV-04 | MR-21 | MR-18 | FS-02  | FS-05 | FS-08 | BB-01 | BF-10  | LI-03  |
| Rock name                      | Dacite | Dacite | Eclog | Eclog | HoGra | MegaX  | MegaX | Eclog | MegaX | Lherz  | Harzb  |
| SiO <sub>2</sub>               | 37.80  | 37.42  | 38.88 | 39.16 | 38.24 | 41.25  | 41.56 | 41.94 | 41.80 | 42.43  | 42.49  |
| TiO <sub>2</sub>               | 0.17   | 0.29   | 0.05  | 0.04  | 0.05  | 0.25   | 1.24  | 0.31  | 0.20  | 0.05   | 0.00   |
| Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> | 21.21  | 20.63  | 21.60 | 21.98 | 21.00 | 23.16  | 20.60 | 23.49 | 23.33 | 22.40  | 20.40  |
| Cr <sub>2</sub> O <sub>3</sub> | 0.05   | 0.05   | 0.05  | 0.07  | 0.05  | 0.05   | 1.60  | 0.14  | 0.21  | 1.83   | 4.63   |
| Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub> |        |        |       |       |       | 0.16   | 1.21  | 0.44  |       |        |        |
| FeO                            | 30.98  | 31.34  | 24.21 | 24.56 | 27.74 | 9.19   | 8.80  | 8.53  | 9.06  | 8.24   | 6.38   |
| MnO                            | 1.86   | 1.67   | 0.56  | 1.22  | 0.71  | 0.19   | 0.27  | 0.34  | 0.34  | 0.40   | 0.47   |
| MgO                            | 5.04   | 3.06   | 8.04  | 9.87  | 5.63  | 13.16  | 19.71 | 18.96 | 17.78 | 20.40  | 21.09  |
| CaO                            | 2.74   | 5.36   | 6.46  | 3.06  | 6.42  | 12.62  | 4.84  | 5.32  | 6.83  | 4.32   | 4.84   |
| Total                          | 99.85  | 99.82  | 99.86 | 99.96 | 99.84 | 100.03 | 99.84 | 99.48 | 99.55 | 100.07 | 100.30 |
| O=12                           |        |        |       |       |       |        |       |       |       |        |        |
| Si                             | 2.997  | 2.999  | 2.996 | 2.995 | 3.003 | 3.001  | 2.990 | 2.998 | 3.003 | 3.015  | 3.019  |
| Ti                             | 0.010  | 0.017  | 0.003 | 0.002 | 0.002 | 0.014  | 0.067 | 0.017 | 0.011 | 0.002  | 0.000  |
| Al                             | 1.982  | 1.949  | 1.962 | 1.981 | 1.944 | 1.985  | 1.747 | 1.978 | 1.974 | 1.876  | 1.708  |
| Cr                             | 0.003  | 0.003  | 0.003 | 0.004 | 0.003 | 0.003  | 0.091 | 0.008 | 0.012 | 0.103  | 0.260  |
| Fe <sup>3+</sup>               |        |        |       |       |       | 0.009  | 0.066 | 0.024 |       |        |        |
| Fe <sup>2+</sup>               | 2.054  | 2.100  | 1.560 | 1.571 | 1.822 | 0.559  | 0.529 | 0.510 | 0.544 | 0.490  | 0.379  |
| Mn                             | 0.125  | 0.113  | 0.037 | 0.079 | 0.047 | 0.008  | 0.016 | 0.021 | 0.021 | 0.024  | 0.028  |
| Mg                             | 0.596  | 0.366  | 0.924 | 1.125 | 0.659 | 1.426  | 2.112 | 2.019 | 1.903 | 2.161  | 2.234  |
| Ca                             | 0.233  | 0.460  | 0.533 | 0.251 | 0.540 | 0.983  | 0.373 | 0.407 | 0.525 | 0.329  | 0.368  |
| Sum                            | 8.000  | 8.007  | 8.018 | 8.008 | 8.020 | 7.988  | 7.991 | 7.982 | 7.993 | 8.000  | 7.996  |
| ppm                            |        |        |       |       |       |        |       |       |       |        |        |
| Ce                             | 38.7   | 1.5    | 4.6   | 3.0   | 0.4   | 1.0    | 1.5   | 0.7   | 0.1   | 0.0    | 1.3    |
| Co                             | 22.7   | 12.3   | 35.4  | 32.7  | 45.7  | 49.4   | 51.9  | 52.7  | 50.1  | 42.3   | 42.3   |
| Cr                             | 96.9   | -      | 67.7  | 159   | 158   | 322    | 11440 | 1220  | 1410  | 12800  | 32430  |
| Cs                             |        |        |       |       |       | 0.07   |       |       | 0.43  |        |        |
| Nb                             | 1.5    | 1.0    | 0.7   | 2.8   | 1.7   | 1.6    | 1.3   | 1.0   | 1.5   | 0.4    | 0.5    |
| Ni                             | 2.3    | 1.3    | 6.3   | 4.1   | 1.4   | 42.6   | 115   | 34.5  | 60.1  | 23.8   | 48.9   |
| Rb                             | 0.9    | tr     | tr    | tr    | 1.0   | 0.5    | 0.9   | tr    | tr    | tr     | tr     |
| Sc                             | 116    | 7.4    | 21.9  | 56.5  | 56.1  | 24.3   | 57.2  | 22.4  | 33.7  | 47.9   | 68.6   |
| Sr                             | 9.5    | 4.2    | 2.7   | 2.3   | 4.9   | 2.7    | 6.0   | 3.9   | 4.5   | 4.6    | 6.5    |
| Y                              | 1480   | 259    | 101   | 239   | 157   | 7.7    | 32.8  | 10.9  | 18.3  | 19.3   | 10.1   |
| Zn                             | 92     | 113    | 126   | 107   | 84    | 40     | 27    | 32    | 33    | tr     | 40     |
| Zr                             | 542    | 160    | 27.3  | 122   | 38.0  | 15.4   | 114   | 21.0  | 48.2  | 16.3   | 70.4   |

\* Conventional analysis.

1. Phenocryst in biotite garnet dacitic welded tuff, Ishizuchi-yama, Shikoku
2. Phenocryst in garnet bearing hornblende dacite, Yamanogawa, Fukushima Pref., NE Japan
3. Crustal eclogite (Cpx+Gt+Rutile) xenolith in latite, Chino Valley, Arizona
4. Crustal eclogite (Gt+Cpx+Ru+Muscovite) xenolith in kimberlite, Moses Rock Dyke, Utah
5. Granulite (Gt+Ho+Pl+Il+Bi+Ep+Mus) xenolith in kimberlite, Moses Rock Dyke, Utah
6. Megacryst in kimberlite, Frank Smith, Kimberley, South Africa
7. Megacryst in kimberlite, Frank Smith, Kimberley, South Africa
8. Mantle eclogite xenolith in kimberlite, Frank Smith, Kimberley, South Africa
9. megacryst in kimberlite, Bells Bank, Kimberley, South Africa
10. Garnet lherzolite xenolith in kimberlite, Bultfontein Floors, Kimberley, South Africa
11. Garnet harzburgite xenolith in kimberlite, Liqhobong, Lesotho

クロ石ハーツバーサイトから、ザクロ石レルゾライト、エクロサイト～メガクリストへとパイロープ成分が減少している。このうち、メガクリスト中のザクロ石については、エクロサイト中のザクロ石の組成に近いものから、パイロープ成分の減少とともにグロシュラル成分が増加する傾向が認められる。その際、スペサルティン成分の増加は認められない。グロシュラル成分は地殻起源のものよりマントル起源ザクロ石の方が高い傾向が認められる。スペサルティン成分は、マントル起源のものに対して、地殻起源のものの方が高く、今回分析した地殻起

源の岩石中では珪長質火山岩中の斑晶において最も高い。マントル起源のザクロ石中ではカンラン岩中のものが他のものより若干高い。

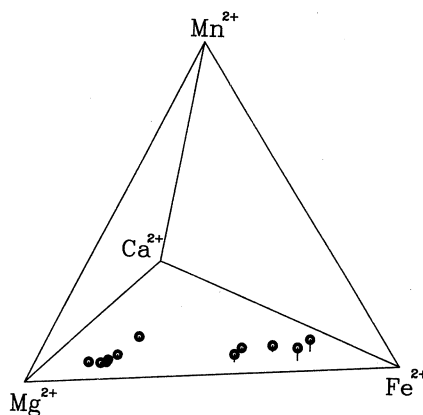
### §5. ザクロ石の相関係

ザクロ石の主な端成分については既にその安定領域が実験的に明らかにされている。例えば、アルマンディン-パイロープ系については、Yoder<sup>8)</sup>, Yoder and Chinner<sup>9)</sup>, そして Boyd and England<sup>10,11)</sup>の研究がある。パイロープ+フォルステライトについては MacGregor<sup>12)</sup>, グロシュラルおよびグロシュラル+石英については Pistorius & Kennedy<sup>13)</sup>や Hays<sup>14)</sup>, そしてアンドラダイトについては Huckenholz<sup>15)</sup>の研究などがある。

パイロープ以外のザクロ石は1気圧下においてもかなりの高温(800~1150°C)まで安定である。したがって、化学組成の条件さえ満たされれば火成岩中に安定相として晶出することが可能である。既に述べたように、実際にアルマンディン成分に富むザクロ石がデイサイトや流紋岩に、またアンドラダイトがアルカリ火成岩に含まれることがある<sup>16)</sup>。一方、パイロープは他のザクロ石と異なり高圧下でないと安定に存在し得ない<sup>11)</sup>。

カルクアルカリ火山岩のザクロ石については、同一産地において、安山岩からデイサイト・流紋岩へとアルマンディン成分が増加する傾向がある<sup>17)</sup>。この傾向は実験的にも確かめられている。<sup>18-22)</sup>また、主成分における変化とともに、Y, La, Sc, VやCrといった微量成分元素においても著しい変化が認められることが知られている<sup>23)</sup>。ただし、相平衡実験において、9~36Kb, 1400~800°Cの条件下で、安山岩質マグマから晶出するザクロ石の組成は天然のものに比較してMg, Caともに富んでいる。また、20Kb前後の圧力下で安山岩質マグマから晶出するザクロ石は、温度の低下とともにパイロープ成分が減少し、グロシュラル成分が増加している。従って、先にマントル起源のメガクリストに見られた同様の組成変化はメガクリストを晶出したマグマの温度差に対応している可能性がある。

パイラルスパイト系ザクロ石の組成は、泥質岩起源の変成岩において、温度の上昇とともにMn→Fe→Mgの方向へ順次変化することが知られている。このようなパイラルスパイトの



第1図 ザクロ石の  $Mg^{2+}$ - $Fe^{2+}$ - $Mn^{2+}$ - $Ca^{2+}$  図。

化学組成の変化は、パイラルスパイトおよびそれと共存する鉱物間の元素分配に支配されて起こる。したがって、パイラルスパイトの化学組成を、変成温度のインディケーターとして用いることが可能である<sup>24,25,26)</sup>。

## §6. ザクロ石の構造と組成

ネソ珪酸塩であるザクロ石の組成は  ${}^{\text{VI}}\text{X}^{2+}{}_3{}^{\text{VI}}\text{Y}^{3+}_2({}^{\text{IV}}\text{Si}^{4+}\text{O}_4)_3$  で表わされる。ザクロ石は立方晶系に属し、独立した Si-O 四面体がその間の配位数 6 の位置にはいった 3 価の陽イオン ( $\text{Y} = \text{Al}^{3+}, \text{Fe}^{3+}, \text{Cr}^{3+}$ , など) や、配位数 8 の位置にはいった 2 価の陽イオン ( $\text{X} = \text{Mg}^{2+}, \text{Fe}^{2+}, \text{Mn}^{2+}, \text{Ca}^{2+}$ , など) によって、相互に結びつけられている。

通常、珪酸塩鉱物における  $\text{Mg}^{2+}$  や  $\text{Fe}^{2+}$  の配位数は 6 であるが、ザクロ石では  $\text{Mg}^{2+}$ ,  $\text{Fe}^{2+}$ ,  $\text{Mn}^{2+}$ ,  $\text{Ca}^{2+}$  といった 2 価の陽イオンが配位数 8 の位置に入っている。このサイトは  $\text{Mg}^{2+}$  には大きすぎ、 $\text{Mn}^{2+}$  や重希土類元素のサイズに適している。その結果、ザクロ石は  $\text{Mn}^{2+}$  や重希土類を選択的に取り込む。 $\text{Mn}^{2+}$  を含むザクロ石は 1 気圧でも合成できるが、 $\text{Mg}^{2+}$  を含むザクロ石は高圧のもとでのみ安定になるのも、これによる<sup>24)</sup>。この問題に関しては第 8 節でさらに詳しく論じる。

ザクロ石は非常に広い範囲の温度圧力条件下において、ほとんど完全な構造的同一性を保っている。低圧下ではスペサルティンが主要なザクロ石であるのに対して、超高压下では 6 配位の Si を含む輝石ストイキオメトリーのザクロ石が安定で、その Mg,  $\text{Fe}^{2+}$  置換体は超高压下でのザクロ石の端成分を成している<sup>27)</sup>。ザクロ石における酸素のパッキングモードは最密充填ではない。その構造は円柱のパッキングによって支配されており<sup>28,29)</sup>、体心立方円柱パッキングを示している。この構造で各円柱は互いに交わらない 3 回回転軸を 4 方向に形成している。そして、大きい電荷を持った小さいイオンの作る多面体  $\text{SiO}_4$ ,  $\text{AlO}_6$  に稜共有がないために、非常に高い密度が実現されている<sup>30)</sup>。

## §7. ザクロ石-マグマ間での元素分配

今回分析を行なったザクロ石については、それらを晶出した液=石基部分の分析を行っていない、あるいは完晶質のために液の組成の推定が不可能であるために結晶-マグマ間の分配係数(結晶中での元素濃度をそれを晶出したマグマ中での元素濃度で割った値)を直接検討することはできない。しかしながら、例えば石鎚火山岩類に属する高野デイサイト中のザクロ石については、その岩石中でのモード%は小さく、全岩組成をそのまま液組成と見なしてもあまり

問題がない。また、その他の完晶質岩中のザクロ石についても、全岩組成に対してザクロ石中にどのような元素が濃集しているかを検討することにより、ザクロ石-マグマ間における元素分配の傾向を知ることが可能であろう。実際に得られた結果にはマントルカンラン岩中のものからデイサイト中のものに至るまで、ある共通の元素濃集傾向が認められる。その傾向はこれまでに報告されているザクロ石-マグマ間での分配係数が示している傾向と類似のものであり、有意のものと判断される。

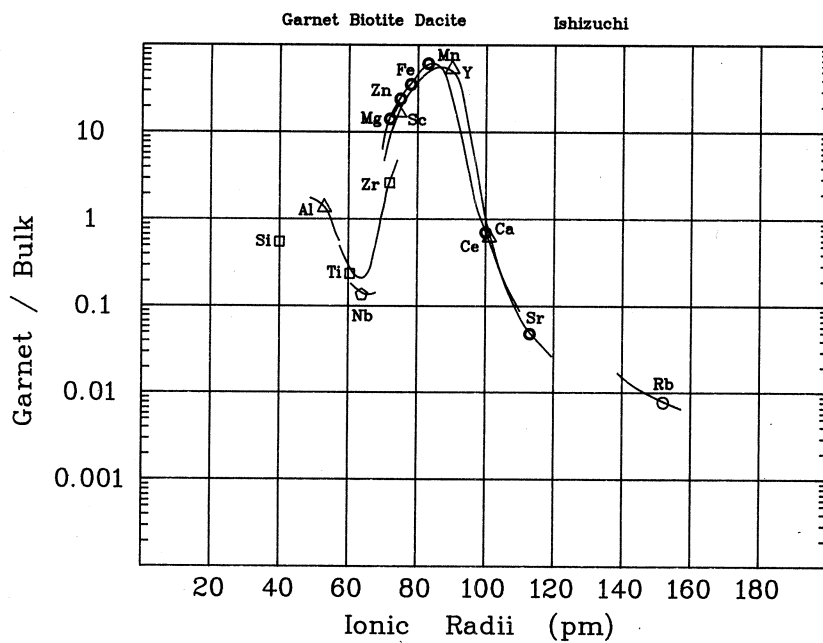
今回分析されたザクロ石のうち、それを包有する岩石の全岩組成が知られている試料について、ザクロ石の組成を全岩組成で割ることにより、ザクロ石組成と全岩組成との組成差を表わした(第2表)。さらにこの結果を各分析元素の6配位イオン半径に対してプロットして、

第2表 いくつかのザクロ石における [ザクロ石/全岩] 比。

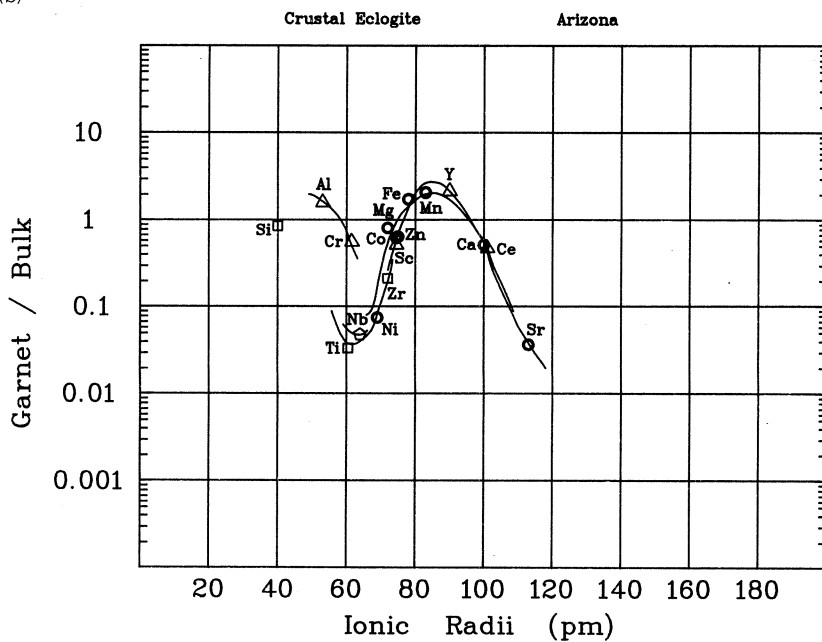
| No.                            | 1               |               |               | 3               |               |               | 9               |               |               | 10              |               |               | 11              |               |               |
|--------------------------------|-----------------|---------------|---------------|-----------------|---------------|---------------|-----------------|---------------|---------------|-----------------|---------------|---------------|-----------------|---------------|---------------|
| Name                           | IS-01<br>Garnet | IS-01<br>Bulk | Ga/B<br>ratio | CV-04<br>Garnet | CV-04<br>Bulk | Ga/B<br>ratio | BB-01<br>Garnet | CB-45<br>Bulk | Ga/B<br>ratio | BF-10<br>Garnet | BF-10<br>Bulk | Ga/B<br>ratio | LI-03<br>Garnet | LI-03<br>Bulk | Ga/B<br>ratio |
| wt. %                          |                 |               |               |                 |               |               |                 |               |               |                 |               |               |                 |               |               |
| SiO <sub>2</sub>               | 37.80           | 70.34         | 0.537         | 38.88           | 45.05         | 0.863         | 41.80           | 28.45         | 1.469         | 42.43           | 44.48         | 0.954         | 42.49           | 45.88         | 0.926         |
| TiO <sub>2</sub>               | 0.17            | 0.72          | 0.236         | 0.05            | 1.56          | 0.032         | 0.20            | 1.68          | 0.119         | 0.05            | 0.12          | 0.417         | 0.00            | 0.07          | 0.000         |
| Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> | 21.21           | 16.04         | 1.322         | 21.60           | 12.96         | 1.667         | 23.33           | 1.13          | 20.646        | 22.40           | 2.98          | 7.517         | 20.40           | 1.14          | 17.895        |
| Cr <sub>2</sub> O <sub>3</sub> | 0.05            | -             | -             | 0.05            | -             | -             | 0.21            | -             | -             | 1.83            | 0.42          | 4.357         | 4.63            | 0.38          | 12.184        |
| Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub> | -               | 1.32          | -             | -               | 2.88          | -             | -               | 5.53          | -             | -               | 2.13          | -             | -               | 1.67          | -             |
| FeO                            | 30.98           | 0.87          | 35.609        | 24.21           | 13.11         | 1.847         | 9.06            | 4.98          | 1.819         | 8.24            | 5.39          | 1.529         | 6.38            | 4.54          | 1.405         |
| MnO                            | 1.86            | 0.03          | 62.000        | 0.56            | 0.27          | 2.074         | 0.34            | 0.20          | 1.700         | 0.40            | 0.14          | 2.857         | 0.47            | 0.09          | 5.222         |
| MgO                            | 5.04            | 0.34          | 14.824        | 8.04            | 9.54          | 0.843         | 17.78           | 34.60         | 0.514         | 20.40           | 38.32         | 0.532         | 21.09           | 43.56         | 0.484         |
| CaO                            | 2.74            | 3.74          | 0.733         | 6.46            | 12.31         | 0.525         | 6.83            | 8.86          | 0.771         | 4.32            | 2.40          | 1.800         | 4.84            | 0.58          | 8.345         |
| Total                          | 99.85           | -             | -             | 99.86           | -             | -             | 99.55           | -             | -             | 100.07          | -             | -             | 100.30          | -             | -             |
| ppm                            |                 |               |               |                 |               |               |                 |               |               |                 |               |               |                 |               |               |
| Ce                             | 38.7            | 62.1          | 0.623         | 4.6             | 9.3           | 0.495         | 0.1             | 245           | 0.000         | 0.0             | 7.5           | 0.000         | 1.3             | 1.9           | 0.684         |
| Co                             | 22.7            | -             | -             | 35.4            | 56.3          | 0.629         | 50.1            | 97.8          | 0.512         | 42.3            | 83.6          | 0.506         | 42.3            | 80.8          | 0.524         |
| Cr                             | 96.9            | -             | -             | 67.7            | 116           | 0.584         | 1410            | 839           | 1.681         | 12800           | 2141          | 5.979         | 32430           | 1895          | 17.113        |
| Cs                             | -               | 4.05          | -             | -               | -             | -             | 0.43            | 0.14          | 3.071         | -               | 0.11          | -             | -               | 0.15          | -             |
| Nb                             | 1.5             | 11.1          | 0.135         | 0.7             | 14.4          | 0.049         | 1.5             | 147           | 0.010         | 0.4             | 3.2           | 0.125         | 0.5             | 1.9           | 0.263         |
| Ni                             | 2.3             | -             | -             | 6.3             | 84.0          | 0.075         | 60.1            | 1013          | 0.059         | 23.8            | 1749          | 0.014         | 48.9            | 2203          | 0.022         |
| Rb                             | 0.9             | 119           | 0.008         | tr              | 2.1           | -             | tr              | 9.2           | -             | tr              | 14.3          | -             | tr              | 2.9           | -             |
| Sc                             | 116             | 10.8          | 10.741        | 21.9            | 42.7          | 0.513         | 33.7            | 11.1          | 3.036         | 47.9            | 6.9           | 6.942         | 68.6            | 6.0           | 11.433        |
| Sr                             | 9.5             | 200           | 0.048         | 2.7             | 72.6          | 0.037         | 4.5             | 615           | 0.007         | 4.6             | 63.8          | 0.072         | 6.5             | 35.6          | 0.183         |
| Y                              | 1480            | 27.8          | 53.237        | 101             | 46.3          | 2.181         | 18.3            | 13.7          | 1.336         | 19.3            | 3.3           | 5.848         | 10.1            | 1.7           | 5.941         |
| Zn                             | 92              | 4.5           | 20.444        | 126             | 196           | 0.643         | 33              | 41            | 0.805         | tr              | 41            | -             | 40              | 42            | 0.952         |
| Zr                             | 542             | 198           | 2.737         | 27.3            | 131           | 0.208         | 48.2            | 243           | 0.198         | 16.3            | 17.1          | 0.953         | 70.4            | 10.6          | 6.642         |

Ga/B ratio : [ザクロ石/全岩] 比

(a)

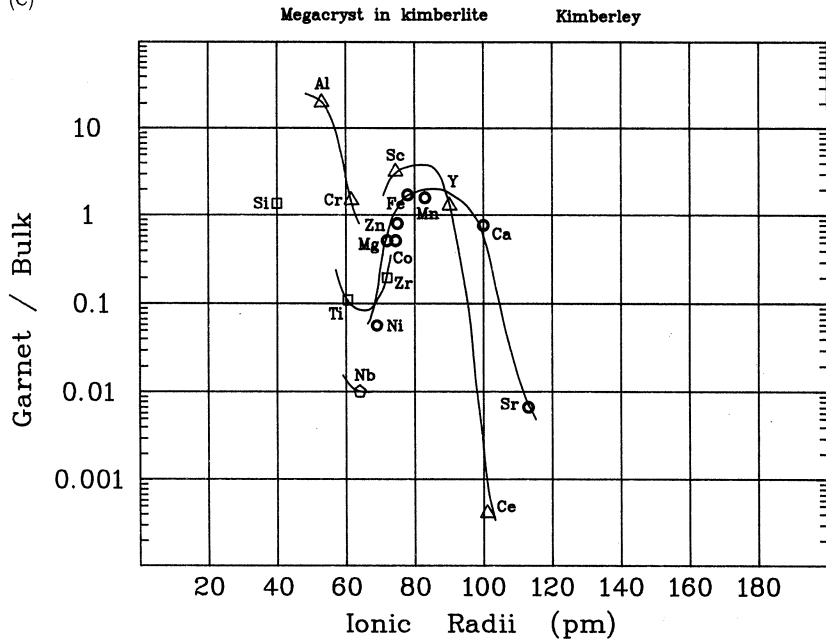


(b)

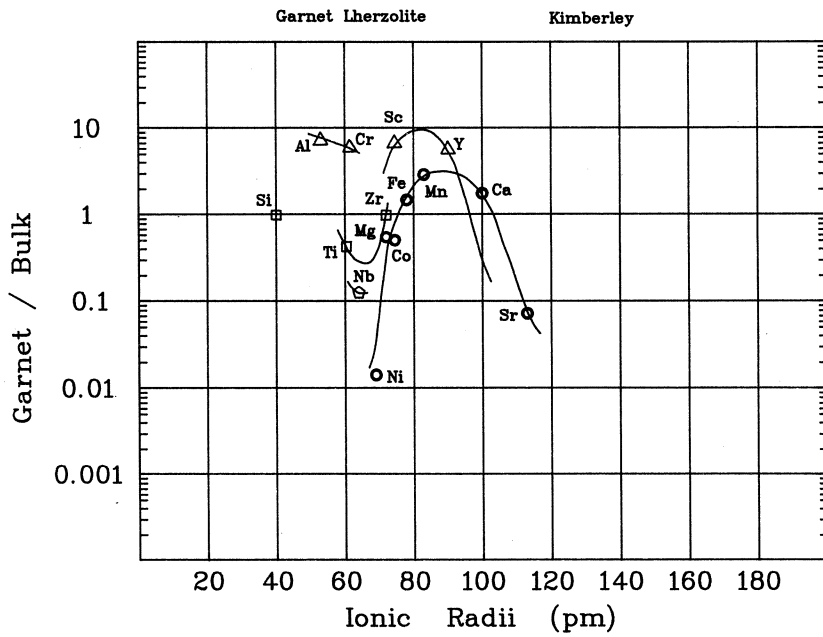


第2図 [ザクロ石/全岩] 比-イオン半径図。

(c)

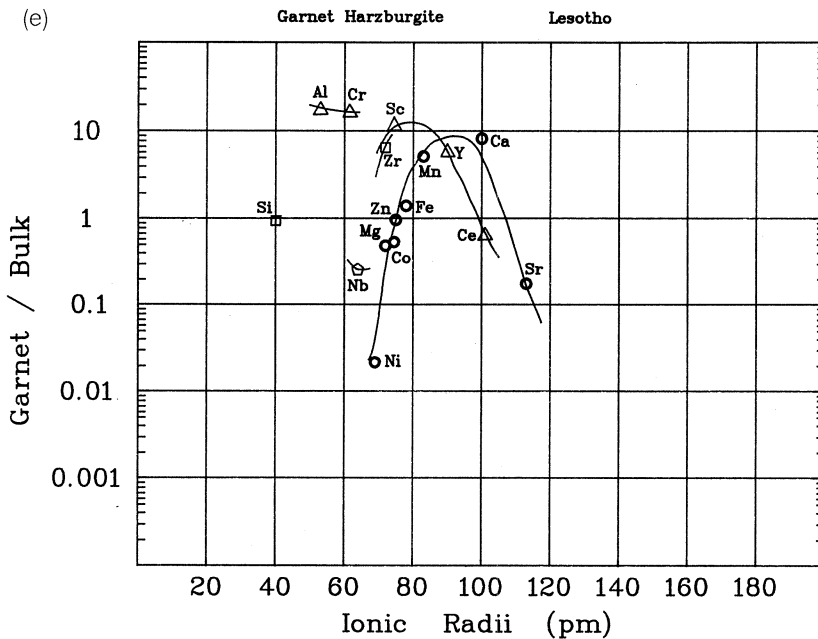


(d)



第2図 [ザクロ石/全岩] 比—イオン半径図 (続き)。





第2図 [ザクロ石/全岩]比-イオン半径図(続き)。  
 細白丸: 1価陽イオン, 太白丸: 2価陽イオン  
 三角: 3価陽イオン, 四角: 4価陽イオン  
 五角: 5価陽イオン  
 イオン半径は Shannon and Prewitt<sup>32,33)</sup>を使用。

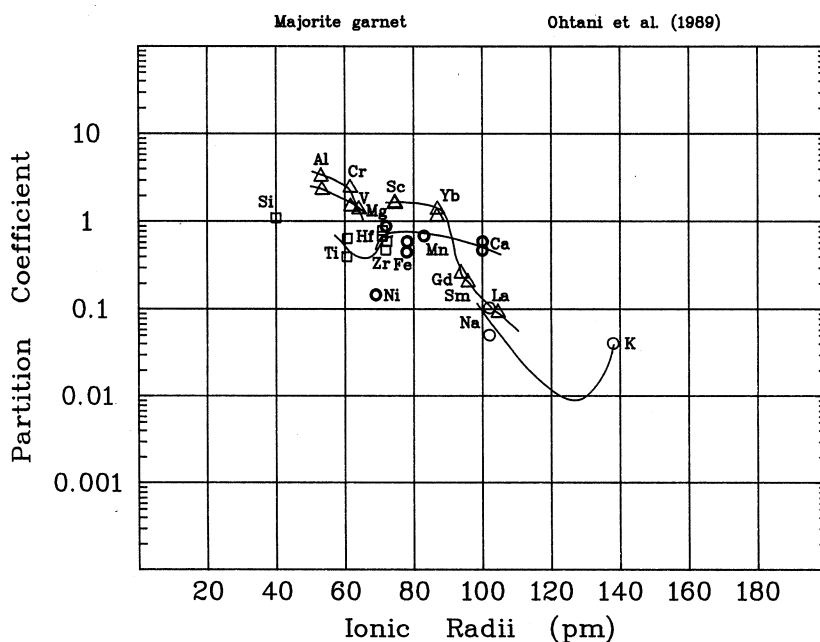
PC-IR図<sup>31)</sup>に類似の図を作成した(第2図 a~e)。これらの図, 特にデイサイト中のザクロ石斑晶が示す曲線においては2価イオンに関する顕著なピークが認められ, これは3価イオンのピークとほぼ重なっているように見える。このピークはザクロ石中の8配位サイトに相当するものである。デイサイト中のザクロ石斑晶におけるピークはほぼMn<sup>2+</sup>とY<sup>3+</sup>の間に位置しており, その両側へと(ザクロ石組成/全岩組成)比は低下している。この8配位サイトに相当するピークに対して, よりイオン半径の小さい側で, Al<sup>3+</sup>やCr<sup>3+</sup>がもう一つの6配位サイトに相当するピークを作っている。このピーク位置は特定できないが, Si<sup>4+</sup>の位置から判断して, Al<sup>3+</sup>よりわずかにイオン半径が小さい側にあると思われる。この結果から, ザクロ石のPC-IR図は6配位サイトと8配位サイトに相当する2つの顕著なピークとこれらの間の一つの谷からなるパターンを持っていることがわかる。パイロープ-アルマンディン系ザクロ石において, Nb, Ni, Tiといった元素はこの谷位置にあるイオン半径を持っており, これらのザクロ石中への濃集度は小さく, これらの元素は残液中により濃集することがわかる。また, 8配位サイトのピークがYの近くにあるために, Luなどの重希土類はザクロ石中に濃集するが, ほか

の希土類元素の濃集度はイオン半径の増加とともに単調に減少し、Ceからはむしろマグマ中に濃集することが予想されるが、これは実験結果と調和的である<sup>34)</sup>。同様に  $\text{Sr}^{2+}$  や  $\text{Rb}^+$  といったイオン半径の大きい元素もザクロ石中にはあまり入らない。

### §8. ザクロ石-液間での元素分配に対する圧力の影響

上部マントルから遷移帯にかけて分布するザクロ石は複雑な化学組成を有しており、その組成は  $[(\text{Mg}, \text{Fe}, \text{Ca})_4\text{Si}_4\text{O}_{12}]_x [(\text{Mg}, \text{Fe}, \text{Ca})_3(\text{Al}, \text{Fe}^{3+}, \text{Cr})_2\text{Si}_3\text{O}_{12}]_{1-x}$  で表わされる<sup>27)</sup>。この  $x$  は圧力の増加とともに0.0から0.6まで大きくなる。このような輝石-ザクロ石固溶体に属する複雑な化学組成をもったザクロ石構造の固溶体に対してメージャライト (majorite) という鉱物名が与えられている<sup>35)</sup>。

超高压下での熔融実験によれば、コンドライト質マントルにおいて、12GPaではカンラン石がリキダス相であるが、さらに高压の12~15GPaになると、メージャライトがリキダス相となる<sup>36)</sup>。マントルの化学的な構造を議論する場合、高压相と液の間の元素分配に関する知識は最も重要な情報の一つであるが、メージャライトと液の間での元素分配については、Kato *et al.*<sup>27,38)</sup> や Ohtani *et al.*<sup>39)</sup> によって研究されている。Ohtani *et al.*<sup>39)</sup> は Al, Ca, Ti, Sc, V, La, Sm, Gd, Yb, Zr, Hf, ならびに, Fe, Ni, Mn, Cr, そして Na, K について、元素分



第3図 メージャライトについてのPC-IR図。

配を検討している。第3図に彼らの結果に基づいて作成したメージャライトのPC-IR図を示す。彼らによれば、メージャライト-液間の元素分配においても、6配位サイトと8配位サイトに相当するピークが認められ、6配位サイトについては $Al^{3+}$ よりもイオン半径が小さい側にある。また、8配位サイトへの元素分配のピーク位置も $Sc^{3+}$ よりもイオン半径が小さい側であり、デイサイト中のザクロ石において予想される8配位サイトのピークが $Mn^{2+}$ と $Y^{3+}$ の間にあることと対照的である。このピーク位置のイオン半径の小さい側への移動に伴って、メージャライトにおいては、ザクロ石に比較して希土類元素が全体として入り難くなり、希土類元素のうち分配係数が1を越えるのはYbなどのイオン半径の小さいもののみである。

このように火山岩中のザクロ石ならびにメージャライトの間に認められる、ザクロ石と液との間での元素分配の違いは、圧力の増加に伴ってザクロ石構造中の各サイトに入り易いイオンのサイズ(すなわち、酸素イオンが作る各サイトのサイズ)が縮少し、ピークの位置が全体としてよりイオン半径の小さい側へとシフトした結果であると考えたと合理的に説明できる。

今回分析したマントル起源のパイロープについては、液との間の分配係数を直接検討することは難しいが、第2図c~eに示された[ザクロ石/全岩]組成比に関する図はデイサイト中のザクロ石とメージャライトにおける液との分配係数の違いから得られた考えと矛盾するものではない。すなわち、地殻起源のザクロ石における3価イオンについてのピークがYの近くにあるのに対して、マントル起源ザクロ石における同ピークはよりイオン半径の小さい $Sc^{3+}$ の近くに位置しているように見える。

逆に、6配位サイトに $Fe^{3+}$ や $Cr^{3+}$ が入り、8配位サイトに $Ca^{2+}$ が入るアンドラダイトやウヴァロヴァイトにおいては、2価の陽イオンならびに3価の陽イオンの6配位ならびに8配位サイトへの元素分配のピーク位置が上に述べたパイロープ-アルマンディン系ザクロ石に比較して、よりイオン半径の大きい側にシフトしていることが予想される。これらのザクロ石は、よく知られているようにパイロープ-アルマンディン系ザクロ石に対して、より大きな格子定数をもっており<sup>40)</sup>、酸素イオンが作る各サイトのサイズが後者より大きいと考えてよい。また、それらの安定領域も、パイロープ、アルマンディン、グロシュラール、アンドラダイトへと、より低圧、高温側へと広がっている。

すなわち、最も低圧側で安定なアンドラダイトにおいては8配位サイトへの元素分配のピークが $Mn^{2+}$ 位置よりもさらにイオン半径の大きい $Ca^{2+}$ 近傍に移り、それに伴って6配位サイトへの元素分配のピークも $Al^{3+}$ 位置から、 $Cr^{3+}$ ~ $Fe^{3+}$ 位置近傍へとシフトしていると推定される。その結果、アンドラダイトにおいては、 $Mg^{2+}$ がさらに8配位サイトに入り難くなり、一方、

$\text{Sr}^{2+}$ の分配係数は大きくなることが予想される。また、3価の陽イオンのうち、 $\text{Sc}^{3+}$ はより入り難くなり、一方、パイロプーアルマンディン系ザクロ石では重希土に対して相対的に入り難い $\text{Ce}^{3+}$ などの軽希土の分配係数がアンドラダイトではより大きくなることが予想される。

6配位サイトへの元素分配のピークが $\text{Al}^{3+}$ 位置から、 $\text{Cr}^{3+}$ や $\text{Fe}^{3+}$ 位置にシフトすることに対応して、パイロプーアルマンディン系ザクロ石では小さな分配係数しか示さなかった、TiやNbといった元素の分配係数がアンドラダイトではより大きくなると推定されるが、実際にアルカリ火成岩中に出現するアンドラダイト、すなわちメラナイトにはTiが含まれるし、Tiに富んだハイドロアンドラダイトも報告されている<sup>4)</sup>。その場合、チタンの多くは $\text{Ti}^{3+}$ となって $\text{Fe}^{3+}$ とともに6配位サイトに入り、8配位サイトはほとんど $\text{Ca}^{2+}$ によって占められている。

ザクロ石中でのグロシュラール ( $\text{Ca}_3\text{Al}_2\text{Si}_3\text{O}_{12}$ ) 成分は、他の成分に比較して最も広範囲にわたって存在している。すなわち、比較的低圧の条件から比較的高圧の条件下までの広い圧力範囲において形成されたザクロ石中において、グロシュラール成分に比較的に富んだものが認められる。上に述べたように圧力の変化は6配位サイトと8配位サイトの両方のサイズを同時に変化させていると推定される。その場合、グロシュラールの主成分である、 $\text{Al}^{3+}$ と $\text{Ca}^{2+}$ に対して圧力の変化は異なる効果を与える。 $\text{Al}^{3+}$ は圧力の低下とともに6配位サイトにより入り難くなるのに対して、 $\text{Ca}^{2+}$ は圧力の低下とともに8配位サイトの最適イオンに近くなっていく。このようなグロシュラールにおける構造と組成のミスマッチが、広い範囲にわたって存在するけれども、スカルンのような特殊な組成の岩石においてしかザクロ石中の主要成分とならないというグロシュラール成分が示す性格を規定しているのであろう。

## §9. PC-IR図上のピークの高さと幅について

メジャライトにおいてはデイサイト中の斑晶ザクロ石に比較して、2価陽イオンが8配位サイトに全体として入り難くなっている。その結果、デイサイト中の斑晶ザクロ石においては8配位サイトのピークの方が6配位サイトのピークより顕著に高いのに対して、メジャライトではその逆に8配位サイトのピークの方が6配位サイトのピークより低くなっている。また、両者について2価の陽イオンが描く8配位サイトのピークの形を比較するとメジャライトの方がデイサイトのピークに対してブロードになっている。

角閃石族鉱物において、アルカリ玄武岩中のホルンブレンドと安山岩中のホルンブレンドとの間で、PC-IR図上での1価、2価、3価の各ピーク ( $\text{M1} + \text{M2} + \text{M3}$ ,  $\text{M4}$ ,  $\text{A}$ ) の高さが、互いに、相対的にも絶対的にも異なっていることが報告されている<sup>31)</sup>。ある鉱物にお

る各サイトならびにイオンの各電荷に対応するピークの高さは、一部の遷移金属イオンやくせの強い元素を除くと、その鉱物の構造と対応するとともに、それが晶出したマグマの組成ならびに構造を反映したものと推定される<sup>31)</sup>。つまり、鉱物中のあるサイトに相当するサイトがマグマ中にも存在すると仮定し、あるイオンの鉱物-マグマ間での対応するサイトへの入りやすさが、鉱物-マグマ間の分配を規定していると考えられる。マグマの組成変化はマグマ側でのサイトの形状を大きく変化させると考えるのは自然であり、その結果として鉱物-マグマ間での元素分配の様子が変化すると考えればよい。そのために、鉱物中の各サイトに対応するピークの高さが相対的にも絶対的にも変化するということが生じて来る。ピークの変化は鉱物側の構造ならびに組成が多様で複雑であればあるほど顕著になるであろう。

このようなPC-IR図上でのピークの高さの変化に関する定量的な取扱いは未だなされておらず、今後の問題であるが、デイサイト中の斑晶ザクロ石とメージャライト間での6配位と8配位サイトのピークの高さが逆転する事実は定性的には次のように理解することが可能であろう。すなわち、メージャライトが晶出した超苦鉄質マグマ中にはザクロ石の8配位サイトへの最適イオンに近い $Mg^{2+}$ や $Fe^{2+}$ といった陽イオンにとって入り易いサイトが多数存在し、一方、 $Al^{3+}$ のためのサイトは乏しいと考えられるのに対して、デイサイト-流紋岩質マグマ中には長石や石英に相当するサイトが多く、 $Al^{3+}$ が液中に捕捉され易いのに対して、 $Mn^{2+}$ 、 $Fe^{2+}$ 、 $Mg^{2+}$ といった2価陽イオンのためのサイトがマグマ中に乏しいために共存するザクロ石中での8配位サイトにこれらのイオンが濃集することが考えられる。

ピークの幅に関連して、Matsui et al.<sup>31)</sup>は、一般に分配係数が低い領域では、曲線の勾配がなだらかになるが、これは主に、分析に用いた鉱物と石基との相互分離が不完全なためであろうと述べている。また、結晶の成長が十分に速く造相元素による鉱物の形成が急速になされる場合に、微量の非造相元素（分配係数が1より十分小さい元素）が結晶成長領域内から排出されずに、造相元素とともに結晶中に取り込まれてしまう状況が起こり得る。例えば、Kobayashi and Takei<sup>41)</sup>が行った5 mm/hの速さで成長させたカンラン石とメルト間での分配はMatsui et al.<sup>31)</sup>が示しているカンラン石斑晶-石基間での分配に比較して、ピークがよりブロードに成っており、これには結晶成長速度の影響も考えられている。また、液とそれから晶出する鉱物の組成が同じ場合には、分配係数は1となり、その結果ピークが低くなってブロードになったように見える場合が起こるのである。

PC-IR図上におけるブロードピークの原因としては、(1)結晶成長速度、(2)鉱物と液との組成関係、(3)晶出時の温度圧力条件、(4)分析上の問題点、などが考えられるが、今のところ、

これらを特定し定量的に取り扱うことは難しい。

## § 10. まとめ

各種火成岩からのパイロプーアルマンディン系ザクロ石について、主要ならびに微量元素組成を定量し、液との元素分配を各分析元素のイオン半径に対して（ザクロ石／全岩）組成比をプロットすることにより検討した。

得られた図には6配位サイトと8配位サイトに相当するピークとこれらの間に位置する谷が認められる。Nb, Ni, Tiといった元素のイオン半径はこのパイラルスパイトザクロ石における元素分配係数の谷位置に相当し、これら元素のパイラルスパイトザクロ石中への濃集度は小さい。

火山岩中のザクロ石ならびにメージャライトにおける液との間の元素分配様式の違いを比べることにより、ザクロ石構造の鉱物での元素分配に対する圧力の影響を検討した。圧力の増加によって、分配係数が示す6配位ならびに8配位サイトに相当するピークの位置が、圧力の増加とともにイオン半径の小さい側へと全体としてシフトしていると考えることにより、ハイドログランダイトからメージャライトに至る、異なる圧力下で形成されたザクロ石間に認められる微量元素を含む組成の違いを統一的に説明することが可能である。

光量子放射化分析にあたって、東北大学核理研の榊本和義博士ならびにライナック・マシングループの方々には大変お世話になった。また、東北大学教養部地学科の蟹沢聰史教授、石川賢一博士、岩鉱教室の大沼晃助教授、藤巻宏和助教授、大谷栄治助教授、弘前大学理学部大貫仁教授には、諸般にわたって御助力頂き、また御議論いただいた。なお、本研究の一部に文部省科学研究費補助金（No.01302019）を使用した。以上の方々、ならびに当局に深謝する。

## 参 考 文 献

- 1) W. A. Deer, R. A. Howie and J. Zussman : Rock-forming Minerals, 1, (Longmans, 1962) p. 333.
- 2) 都城秋穂 : 地質学雑誌 61 (1955) 463.
- 3) A. E. Ringwood : Advances in Earth Science, ed. P. M. Hurley (MIT Press, 1966) 287.
- 4) H. Onuki, M. Akasaka, T. Yoshida and M. Nedachi : Contrib. Mineral. Petrol. 80 (1982) 183.

- 5) T. Yoshida : J. Geophys. Res. **89** (1984) B8502.
- 6) 加納 博, 八島隆一 : 岩鉱 **71** (1976) 106.
- 7) T. Yoshida, K. Masumoto and K. Aoki : J. Japan. Assoc. Min. Petr. Econ. Geol. **81** (1986) 406.
- 8) H. S. Yoder : Geol. Soc. Amer. Special Paper **62** (1955) 505.
- 9) H. S. Yoder and G. A. Chinner : Annual Rep. Geophys. Lab. for 1959-1960 (1960) 81.
- 10) F. R. Boyd and J. L. England : Annual Rep. Geophys. Lab. for 1958-1959 (1959) 83.
- 11) F. R. Boyd and J. L. England : Carnegie Inst. Washington, Year Book **61** (1962) 109.
- 12) I. D. MacGregor : Am. Mineral. **59** (1974) 110.
- 13) C. W. F. T. Pistorius and G. C. Kennedy : Am. J. Sci. **258** (1960) 247.
- 14) J. F. Hays : Carnegie Inst. Washington, Year Book **65** (1967) 236.
- 15) H. G. Huckenholz : Carnegie Inst. Washington, Year Book **67** (1969) 139.
- 16) E. S. Larsen : U. S. Geol. Surv., Prof. Paper **197-A** (1942) 1.
- 17) J. B. Gill : Orogenic andesites and plate tectonics. (Springer Verlag, 1981) p.390.
- 18) T.H. Green and A. E. Ringwood : Contrib. Mineral. Petrol. **18** (1968) 105.
- 19) T. H. Green and A. E. Ringwood : Contrib. Mineral. Petrol. **18** (1968) 163.
- 20) T. H. Green : Contrib. Mineral. Petrol. **34** (1972) 150.
- 21) C. R. Stern and P. J. Wyllie : Am. Mineral. **63** (1978) 641.
- 22) I. A. Nicholls and K. L. Harris : Geochim. Cosmochim. Acta **44** (1980) 287.
- 23) J. G. Fitton : Contrib. Mineral. Petrol. **36** (1972) 231.
- 24) A. Miyashiro : Geochim. Cosmochim. Acta **4** (1953) 179.
- 25) K. S. Heier : Norsk Geol. Tidsskr. **36** (1956) 167.
- 26) B. A. Sturt : Jour. Petrol. **3** (1962) 181.
- 27) M. Akaogi and S. Akimoto : Phys. Earth Planet. Interiors **15** (1977) 90.
- 28) M. O' Keeffe : Acta Crystallogr. **A33** (1977) 921.
- 29) M. O' Keeffe and S. Andersson : Acta Crystallogr. **A33** (1977) 914.
- 30) 松井義人 : 松井・坂野編, 地球の物質科学Ⅲ-岩石・鉱物の地球化学-(岩波書店, 1979)  
1、
- 31) Y. Matsui, N. Onuma, H. Nagasawa, H. Higuchi and S. Banno : Bull. Soc. Fr. Mineral. Crystallogr. **100** (1977) 315.

- 32) R. D. Shannon and C. T. Prewitt : Acta Crystallogr. **B25** (1969) 925.
- 33) R. D. Shannon and C. T. Prewitt : Acta Crystallogr. **B26** (1970) 1046.
- 34) N. Shimizu and I. Kushiro : Geophys. Res. Letters **2** (1975) 413.
- 35) 秋本俊一 : 秋本・水谷編, 地球の物質科学 I - 高压高温の世界 - (岩波書店, 1978) 157.
- 36) E. Ohtani, T. Kato and H. Sawamoto : Nature **322** (1986) 352.
- 37) T. Kato, A. E. Ringwood and T. Irifune : Geophys. Res. Lett. **14** (1987) 546.
- 38) T. Kato, A. E. Ringwood and T. Irifune : Earth Planet. Sci. Lett. **89** (1988) 123.
- 39) E. Ohtani, I. Kawabe, J. Moriyama and Y. Nagata : Contrib. Mineral. Petrol. **103** (1989) 263.
- 40) B. J. Skinner : Am. Mineral. **41** (1956) 428.
- 41) T. Kobayashi and H. Takei : Earth Planet. Sci. Lett. **36** (1977) 231.



## 東北本州弧，秋田焼山火山噴出物の地球化学的研究

理学部地学，教養部\*

大場 司・吉田武義\*・青木謙一郎

### §1. 緒 言

秋田焼山火山は秋田県東部に位置し，東北本州弧脊梁火山列に属する第四紀火山である。筆者らの一人（T.O.）は火山体下におけるマグマの進化過程を解明することを目的とし，秋田焼山火山をフィールドにして，その地質層序ならびに岩石学的特徴の記載を行ってきた。

秋田焼山火山の活動史は古期，中期，新期に三分できるが，その噴火様式と噴出物の岩石学的特徴は活動時期とともに相伴って変化している。古期は溶岩流主体の活動である。中期は成層火山体を形成した活動であり，溶岩流と降下火砕岩を主体とする中心噴火の活動である。山体の大部分はこの時期に形成された。新期の活動は降下火砕岩の中心噴火及び側噴火，山頂付近及び山腹での溶岩円頂丘の形成，山腹からの溶岩流の流出などで特徴づけられる。活動様式の変化にともなって噴出物の岩石学的特徴も変化し，特に班晶鉱物組合せには特徴的な変化が認められる。

本報告では秋田焼山火山噴出物の主成分化学組成及び光量子放射化分析による微量成分の分析結果を示し，層序や岩石記載と併せて，マグマの進化過程に関する考察を行う。

### §2. 地質概略

秋田焼山火山の基盤は中新統および玉川溶結凝灰岩であり，いずれも100万年より古い。また，須藤<sup>1)</sup>は本火山体の直下に，周囲に対して数100 m 落ち込んだ古地形が存在することを明らかにし，この凹陷地形がカルデラである可能性を述べている。彼はこれを秋田焼山火山の噴出にかかわるものではなく，むしろ100万年以前の玉川溶結凝灰岩の噴出と関係があるかもしれないと考え，先焼山カルデラと仮称している。秋田焼山火山はこのカルデラの中央に位置している。

秋田焼山火山の詳しい地質については，著者らの一人（T.O.）が最近報告している<sup>2)</sup>。その活動は古期，中期，新期に大別できる。秋田焼山火山の形成史の概略を第1図に示す。秋田焼山火山噴出物は，地表試料，試錐試料ともにすべて正帯磁を示している<sup>3)</sup>。また，試錐中

の4試料のK-Ar年代はいずれも約0.4~0.5 Maの値を示し、すべてブリュンヌ正常期に対比される<sup>3)</sup>ことから、本火山噴出物の大部分はそれ以降に形成されたものである。

秋田焼山火山噴出物のうち、古期活動の噴出物は山麓部に断片的に露出している。おもに溶岩流からなり、少量の火砕流堆積物を伴う。これらは山麓部の侵食の進んだ急峻な斜面や谷底にのみ分布する。これに対し、中期活動の噴出物はかなり溶岩流の原地形を残している。古期活動の噴出物は石基にピジョン輝石を含むピジョン輝石質岩系の岩石が一般的であるのに対して、中期活動の噴出物は全て石基に紫蘇輝石を含む紫蘇輝石質岩系の岩石である。このように、古期活動と中期活動の噴出物の間には、地形ならびに岩石の種類に明瞭な違いがみられることから、両活動の間にはかなりの時間間隙があったと推定され、両者は明瞭に異なる噴火活動の産物であると考えられる。

中期噴出物(M; 試料名にMがついたものがこれに属する、以下に示す記号もこれに同じ)は成層火山体を構成し、降下火砕岩と溶岩流を主体とする。火口壁や山頂周辺の馬蹄形凹地内では中期の降下火砕岩と溶岩が互層をなしており、成層火山体中心部の内部の特徴を示している。山頂付近では厚い降下火砕岩の間に数枚の溶岩流が挟まれている。山麓では降下火山灰、溶岩、火砕流堆積物、二次堆積物が互層をなしている。新期活動と中期活動の間には侵食間隙がある。山頂周辺にはいくつかの馬蹄形の凹地が存在し、これらは中期と新期の間の休止期間に形成されたと考えられる。

新期活動は、中期活動に対して侵食間隙を挟んで活動を開始し、有史時代まで続いている。それは山頂付近での噴火(L-1)に始まり、側噴火(L-2, L-3)、山頂付近での溶岩円頂丘(L-4)の形成へと続く(第1図参照)。

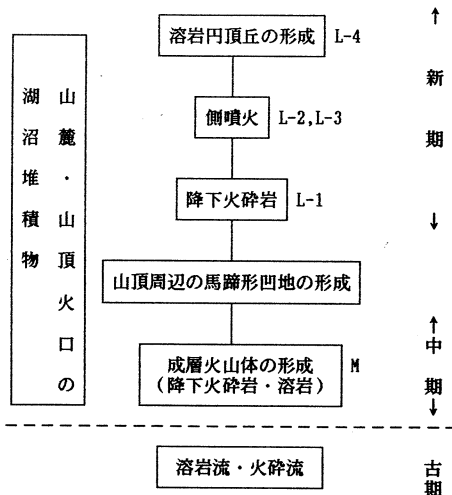
山麓の西麓、東麓、および山頂火口内には湖沼性の堆積物がみられる。これらは中期および新期活動の時期に堆積しており、西麓部では堆積物中に中期活動の噴出物が挟まれている。

### §3. 岩石記載

以下に主な噴出物について、その記載岩石学上の特徴を述べる。

#### (1) 古期噴出物

古期噴出物はいんらん石含有紫蘇輝石普通輝



第1図 秋田焼山火山の地史概略。

石安山岩ならびに紫蘇輝石普通輝石安山岩からなる。斑晶鉱物として斜長石、普通輝石、紫蘇輝石、磁鉄鉱、チタン鉄鉱を含み、ときにかんらん石斑晶を少量含むこともある。その場合、かんらん石斑晶の周囲には紫蘇輝石の反応縁がみられる。石基は間粒状であり、斜長石、普通輝石、ピジョン輝石ならびに鉄鉱からなる。紫蘇輝石、普通輝石、斜長石、磁鉄鉱およびチタン鉄鉱斑晶はしばしば集斑晶を成す。

#### (2) 中期噴出物

中期噴出物（第1図のM）はかんらん石含有紫蘇輝石普通輝石安山岩ならびに紫蘇輝石普通輝石安山岩からなる。斑晶鉱物としては斜長石、普通輝石、紫蘇輝石、磁鉄鉱、チタン鉄鉱を含み、かんらん石斑晶を少量含むこともある。このかんらん石斑晶の周囲には紫蘇輝石の反応縁がみられる。また、斜長石斑晶にはダストゾーニングを持つものがまれにみられる。石基はハイアロオフィティック〜ガラス質であり、斜長石、普通輝石、紫蘇輝石、鉄鉱からなる。斑晶の紫蘇輝石、普通輝石、斜長石、磁鉄鉱、チタン鉄鉱はしばしば集斑晶を成す。

#### (3) 新期噴出物-1

新期噴出物-1（第1図のL-1）は紫蘇輝石普通輝石かんらん石安山岩からなる。秋田焼山火山噴出物の中では最も斑晶が少なく、その量は約15-18%である。斑晶鉱物としては斜長石、かんらん石、紫蘇輝石、普通輝石、磁鉄鉱がみられる。石基はガラス基流晶質であり、斜長石、普通輝石、紫蘇輝石ならびに鉄鉱からなる。斑晶のうち、斜長石にはしばしばダストゾーニングがみられる。かんらん石斑晶には反応縁を持たないものが多く、紫蘇輝石の反応縁を持つものもその厚さは数10 $\mu$ m以下であり、石基紫蘇輝石のサイズより薄い。かんらん石斑晶は自形性が強く、粒状のものから骸晶状のものまで種々の形態を示している。斑晶のうち、紫蘇輝石、普通輝石、斜長石、磁鉄鉱およびチタン鉄鉱は集斑晶を成すことが多い。かんらん石斑晶が他の鉱物と集斑状を呈することはない。また、内部にしばしばクロムスピネルを含んでいる。

#### (4) 新期噴出物-2

新期噴出物-2（第1図のL-2）は石英含有かんらん石紫蘇輝石普通輝石安山岩からなる。多斑晶質であり、斑晶鉱物としては斜長石、普通輝石、紫蘇輝石、かんらん石、石英、磁鉄鉱およびチタン鉄鉱がみられる。石基はハイアロオフィティックであり、斜長石、普通輝石、紫蘇輝石、そして鉄鉱からなる。かなり多くの斜長石斑晶においてダストゾーニングやパッチ状構造がみられる。主晶に対してよりアルバイト成分に富んだパッチの部分にはクラックが発達していることが多い。かんらん石斑晶は自形粒状を呈するが、通常、厚い紫蘇輝石の反応縁

で覆われている。紫蘇輝石・普通輝石・斜長石・磁鉄鉱ならびにチタン鉄鉱はしばしば集斑晶を成す。

#### (5) 新期噴出物－3

新期噴出物－3（第1図のL－3）は石英含有普通輝石紫蘇輝石安山岩からなる。多斑晶多孔質であり、斑晶鉱物として斜長石、紫蘇輝石、普通輝石、石英、磁鉄鉱、チタン鉄鉱がみられる。石基はハイアロオフィティックもしくはガラス質であり、斜長石、紫蘇輝石、普通輝石、鉄鉱からなる。気孔中にはしばしばシリカ鉱物（トリディマイト、クリストバライト）が認められる。斑晶のうち、紫蘇輝石、普通輝石、斜長石、磁鉄鉱、チタン鉄鉱は集斑状を呈する。

#### (6) 新期噴出物－4

新期噴出物－4（第1図のL－4）はかんらん石含有普通輝石紫蘇輝石デイサイトならびに普通輝石紫蘇輝石デイサイトからなる。斑晶鉱物としては斜長石、石英、紫蘇輝石、普通輝石、磁鉄鉱、チタン鉄鉱がみられる。石基はハイアロオフィティックで、斜長石、紫蘇輝石、普通輝石、鉄鉱ならびにガラスからなる。斜長石斑晶はクリアなものがほとんどであり、ダストゾーニングなどはみられない。まれにかんらん石斑晶がみられるが、厚い紫蘇輝石の反応縁で覆われている。紫蘇輝石・普通輝石・磁鉄鉱・チタン鉄鉱・斜長石は集斑晶をなすことがある。また、気孔中にはトリディマイトやクリストバライトがみられることもある。

これらの岩石について、主要な構成鉱物ならびに全岩の化学組成を分析した。

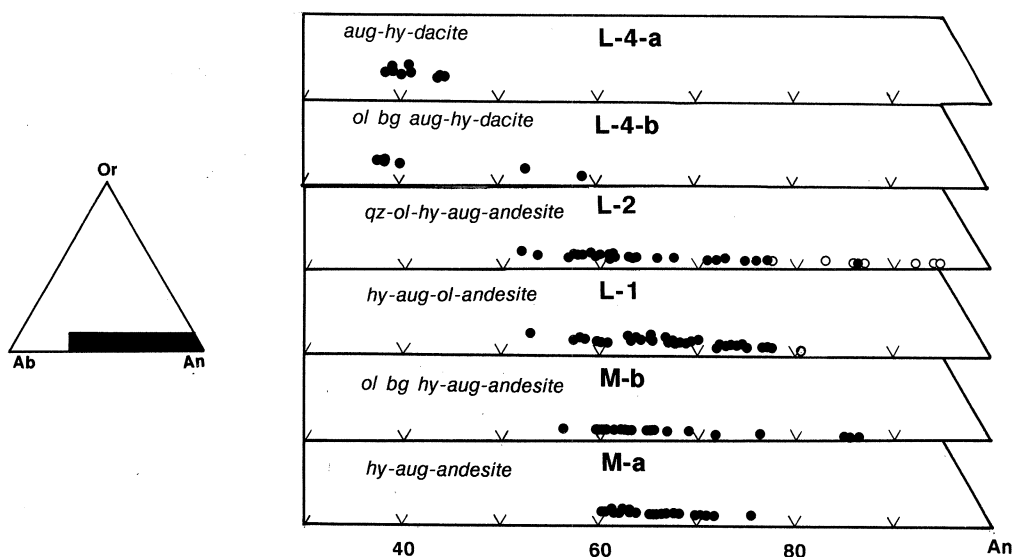
## §4. 造岩鉱物の化学組成

秋田焼山火山噴出物のうち、中期ならびに新期活動噴出物の主要な造岩鉱物について、その化学組成をEPMAを用いて分析した<sup>4)</sup>。

中期噴出物は、斑晶として斜長石、普通輝石、斜方輝石、磁鉄鉱、チタン鉄鉱を含む。かんらん石斑晶は含むもの（M－a）と含まないもの（M－b）があるが、これら両者について斑晶のEPMA分析を行った。新期噴出物－1は斜長石、普通輝石、斜方輝石、磁鉄鉱のほかに多量のかんらん石斑晶を含む。新期噴出物－2には斜長石、普通輝石、斜方輝石、磁鉄鉱、チタン鉄鉱、かんらん石および石英が斑晶として認められる。新期噴出物－4は、斑晶として斜長石、斜方輝石、普通輝石、石英、磁鉄鉱、チタン鉄鉱を含むが、そのほかに少量のかんらん石を含む場合（L－4－b）と含まない場合（L－4－a）とがあり、これら両者について分析を行った。

## (1) 斜長石

斜長石斑晶の組成を第2図に示す。安山岩中の斑晶斜長石の組成幅はかなり広く、An成分は52から95の間で変化している。斑晶毎に組成が異なるという訳ではなく、一つの斑晶が広い組成幅を持っているためである。安山岩におけるサンプル間での斑晶斜長石組成の違いはあまりない。斑晶斜長石が示す組成累帯構造はかなり複雑である。鏡下でダストゾーニングを呈する部分は周囲のクリアな部分よりもAn成分が高く、An 76-95を示す(第2図の白丸)。パッチゾーニングを示す部分のパッチ部は、その周囲のクリアでAn 58-76を示す部分よりもAn成分が低く、An52-58である。新期噴出物-4に属するデイサイト中の斜長石斑晶はほとんどすべてクリアな結晶である。かんらん石を含むデイサイト(L-4-b)中には、一部に安山岩中の斑晶斜長石組成に相当するAn成分を持つものも認められるが(An 53-58)、大部



第2図 斜長石斑晶の組成。

白丸はダストゾーニング部の組成を示す。

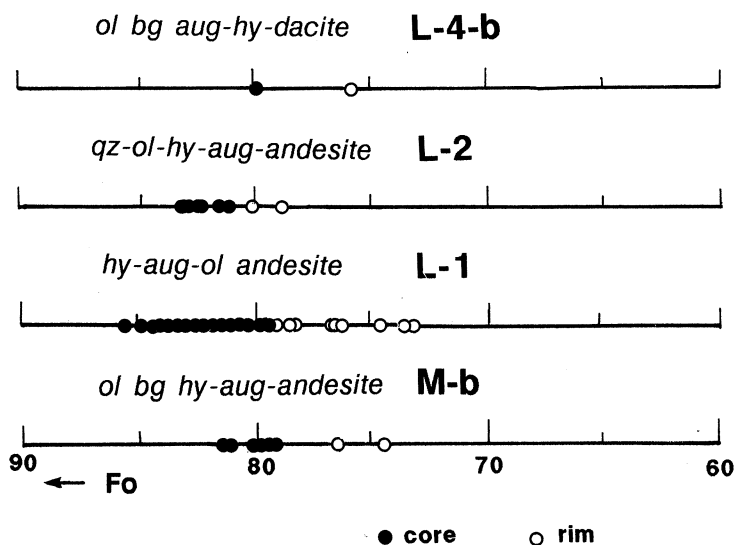
M-a : かんらん石斑晶を含まない中期噴出物,

M-b : かんらん石斑晶を含む中期噴出物,

L-1 : 新期噴出物-1, L-2 : 新期噴出物-2,

L-4-a : 新期噴出物-4 (かんらん石斑晶を含まない),

L-4-b : 新期噴出物-4 (かんらん石斑晶を含む)。



第3図 かんらん石斑晶の組成。  
黒丸は斑晶の核部，白丸は縁辺部を表わす。

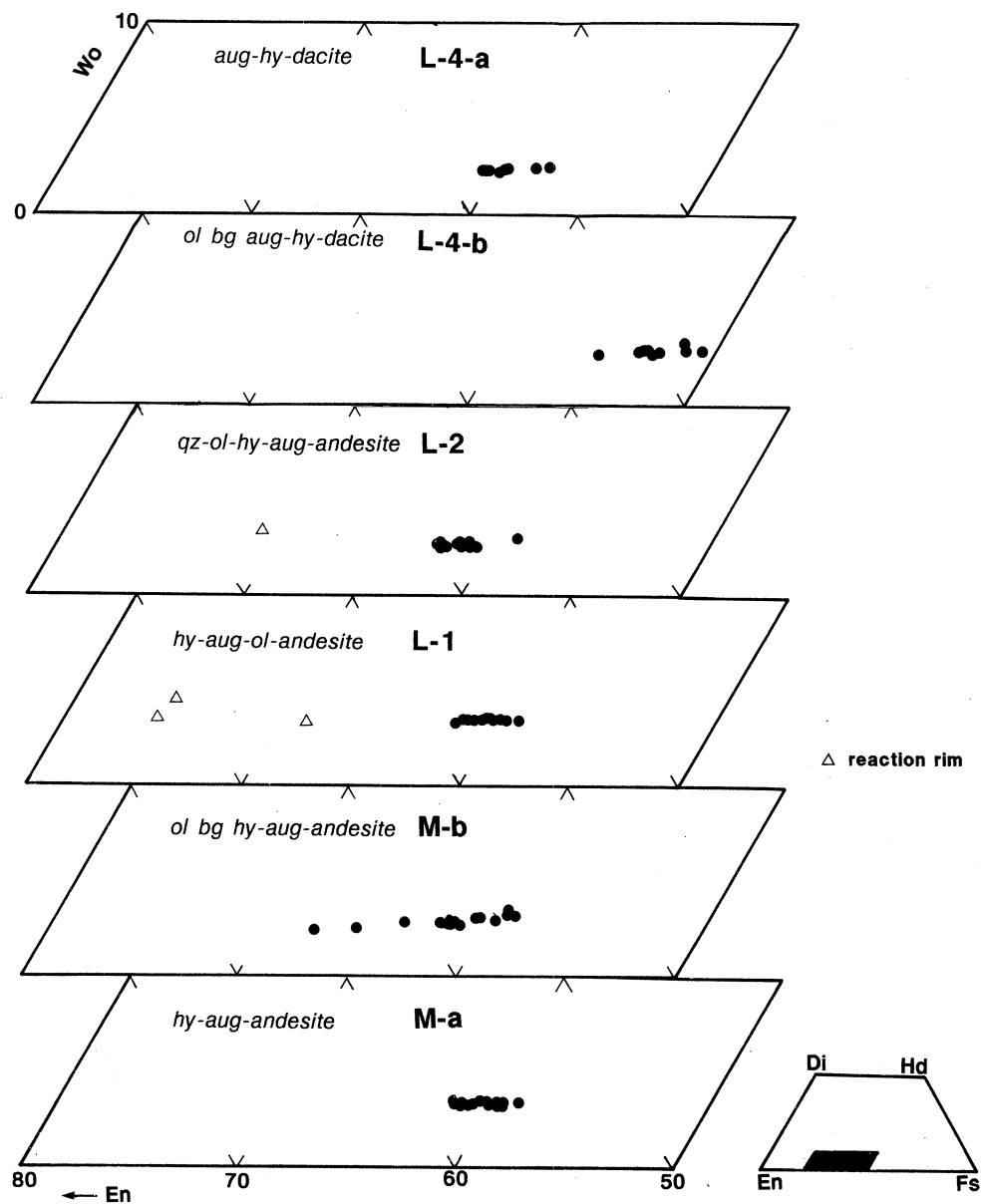
分の斑晶斜長石の組成は An 38~45 である。累帯構造は顕著ではなく，各斑晶中での組成の変化はあまり大きくない。

## (2) かんらん石

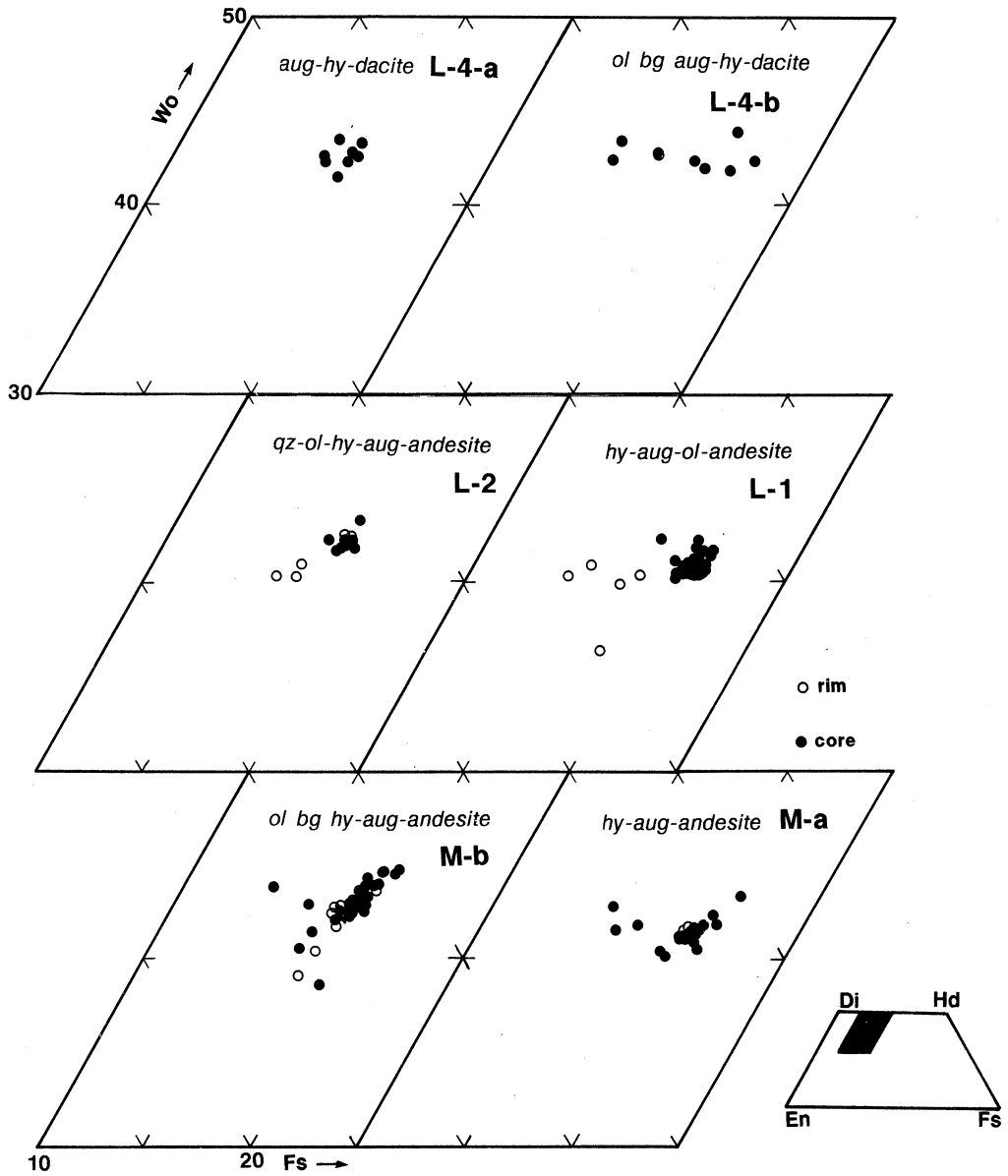
かんらん石斑晶の組成を第3図に示す。かんらん石は，中期噴出物の一部 (M-b)，新期噴出物-1 (L-1)，新期噴出物-2 (L-2)，新期噴出物-4の一部 (L-4-b) に斑晶として含まれる。斑晶の最外縁部 (図3の白丸) を除くと，大部分のかんらん石の組成は Fo 79~86の範囲にあり，サンプル毎の大きな違いは認められない。中期噴出物中の斑晶かんらん石の核部の組成は Fo 79~82である。新期噴出物-1中にみられるかんらん石斑晶の核部の組成は Fo 79~86であり，そのなかでも82~84を示す部分が最も多い。新期噴出物-2中のかんらん石斑晶の核部の組成は Fo 81~83である。新期噴出物-4のデイサイト中のかんらん石は非常に量が少なく一斑晶のみ分析を行った。その核部の組成は Fo 80であり，他の新期噴出物のかんらん石組成の範囲内にある。どのサンプルにおいても最外縁部分はより Fe に富む傾向がある。

## (3) 斜方輝石

斜方輝石斑晶の組成を第4図に示す。図中，三角印は，かんらん石周囲に形成された反応縁を構成する斜方輝石の組成を示しており，斑晶斜方輝石とは明瞭に異なっている。中期噴出物，新期噴出物-1，新期噴出物-2，ならびに新期噴出物-4 (L-4-a) 中に産する斑晶斜



第4図 斜方輝石の組成。  
 黒丸は斑晶を示し、白三角はかんらん石の反応縁を示す。



第5図 普通輝石斑晶の組成。  
 黒丸は斑晶核部，白丸は斑晶縁辺部を示す。



方輝石の Mg/Fe 比はほとんど変わらず En 56~61 を示す。安山岩中の斜方輝石は Wo<sub>2.5</sub>~3.9 を示すのに対して、デイサイト (L-4-a) 中の斜方輝石は Wo<sub>2.3</sub>~2.7 を示し、後者の方が Wo 成分が乏しい。一方、新期噴出物-4 (L-4-b) 中の斜方輝石はより鉄に富んでおり、En 53~55 を示す。

#### (4) 普通輝石

普通輝石斑晶の組成を第 5 図に示す。異なるサンプル間での斑晶普通輝石組成の顕著な違いは認められず、いずれも En<sub>38</sub>~42, Wo<sub>40</sub>~44 の範囲にはいる。かんらん石斑晶を持つ中期噴出物 (M-b), 新期噴出物-1 (L-1), 新期噴出物-2 (L-2) 中の普通輝石には、周縁部 (厚さ約 100 μm, 第 5 図の白丸) において核部よりも En 成分が増加し、Wo 成分が減少するという逆累帯構造がみられる。

## §5. 全岩化学組成

### (1) 分析方法と分析結果

全岩組成のうち、SiO<sub>2</sub>, TiO<sub>2</sub>, Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, 全鉄, MgO, CaO, Na<sub>2</sub>O, K<sub>2</sub>O, P<sub>2</sub>O<sub>5</sub> については蛍光 X 線法を用いて分析を行った。また、FeO については、過マンガン酸カリ滴定法により、H<sub>2</sub>O については重量法により分析を行った。微量成分のうち、Ba, Co, Cr, Cs, Nb, Ni, Rb, Sc, Sr, Y, Zn, Zr については東北大学理学部原子核理学研究施設において電子ライナックを利用し、30 MeV 加速電子を用いて光量子放射化分析法<sup>5)</sup>により定量した。それらの結果を第 1 表に示す。

### (2) 主成分元素

第 6 図に主成分元素についての横軸に SiO<sub>2</sub> をとった変化図を示す。秋田焼山火山噴出物は SiO<sub>2</sub> が 56~63 wt% の安山岩と 69~71 wt% のデイサイトからなる。そのうち、古期活動の噴出物は SiO<sub>2</sub> が 58~60 wt% の安山岩であり、中期活動の噴出物は SiO<sub>2</sub> が 58~63 wt% の安山岩からなる。新期噴出物-1 は SiO<sub>2</sub> が 56~59 wt% の安山岩、新期噴出物-2 は SiO<sub>2</sub> が 56~61 wt% の安山岩、新期噴出物-3 は SiO<sub>2</sub> が 63 wt% の珪長質安山岩からなり、新期噴出物-4 は SiO<sub>2</sub> が 69~71 wt% のデイサイトから構成されている。横軸を SiO<sub>2</sub> にとった組成変化図上では各元素とも一つのトレンドをなし、活動期による大きな違いは認められない。

### (3) 微量成分元素

第 7 図に横軸に SiO<sub>2</sub> をとった微量成分元素の組成変化図を示す。SiO<sub>2</sub> の増加にともなって、Rb, Zr, Ce, そして Nb は単調に増加し、一方、Cr, Sr, Co, Ni, Sc は単調に減少している。

第1表 秋田焼山火山噴出物の全岩化学組成。

| No.                            | 1      | 2      | 3      | 4      | 5      | 6      | 7      | 8      | 9      | 10     | 17     |
|--------------------------------|--------|--------|--------|--------|--------|--------|--------|--------|--------|--------|--------|
| 活動時期                           | 古期     | 古期     | 中期     | 新期-1   | 新期-1   | 新期-2   | 新期-2   | 新期-2   | 新期-3   | 新期-4   | 新期-4   |
| wt. %                          |        |        |        |        |        |        |        |        |        |        |        |
| SiO <sub>2</sub>               | 58.92  | 58.12  | 60.45  | 56.91  | 57.98  | 57.45  | 56.30  | 60.68  | 62.42  | 67.72  | 70.81  |
| TiO <sub>2</sub>               | 0.72   | 0.70   | 0.73   | 0.74   | 0.79   | 0.72   | 0.80   | 0.71   | 0.74   | 0.51   | 0.57   |
| Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> | 15.19  | 16.12  | 15.24  | 14.40  | 15.44  | 15.35  | 16.97  | 15.07  | 14.48  | 13.82  | 15.50  |
| Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub> | 3.76   | 4.62   | 3.74   | 2.83   | 3.56   | 3.29   | 4.27   | 2.65   | 4.80   | 2.29   | 1.32   |
| FeO                            | 5.43   | 4.57   | 4.82   | 7.02   | 6.24   | 6.31   | 5.16   | 5.06   | 2.48   | 2.53   | 1.82   |
| MnO                            | 0.116  | 0.135  | 0.134  | 0.152  | 0.147  | 0.144  | 0.152  | 0.125  | 0.120  | 0.100  | 0.10   |
| MgO                            | 3.72   | 3.69   | 3.45   | 5.80   | 4.04   | 4.65   | 5.12   | 3.83   | 3.35   | 1.61   | 0.82   |
| CaO                            | 6.91   | 7.05   | 6.27   | 7.44   | 6.91   | 7.51   | 7.14   | 6.88   | 6.20   | 3.27   | 3.14   |
| Na <sub>2</sub> O              | 2.55   | 2.51   | 2.87   | 2.77   | 2.48   | 2.30   | 2.07   | 2.69   | 2.91   | 3.60   | 3.40   |
| K <sub>2</sub> O               | 1.27   | 1.29   | 1.68   | 1.19   | 1.06   | 1.10   | 0.70   | 1.38   | 1.73   | 2.23   | 2.06   |
| H <sub>2</sub> O(+)            | 0.95   | 1.01   | 0.39   | 0.52   | 0.92   | 0.80   | 0.48   | 0.71   | 0.46   | 1.80   | 0.35   |
| H <sub>2</sub> O(-)            | 0.37   | 0.09   | 0.14   | 0.13   | 0.31   | 0.29   | 0.74   | 0.14   | 0.24   | 0.41   | 0.12   |
| P <sub>2</sub> O <sub>5</sub>  | 0.100  | 0.093  | 0.089  | 0.108  | 0.109  | 0.089  | 0.094  | 0.091  | 0.083  | 0.107  | 0.06   |
| total                          | 100.00 | 100.00 | 100.00 | 100.00 | 100.00 | 100.00 | 100.00 | 100.00 | 100.00 | 100.00 | 100.07 |
| ppm                            |        |        |        |        |        |        |        |        |        |        |        |
| Ba                             | 319    | 279    | 417    | 315    | 280    | 294    | 259    | 249    | 611    | 311    | 539    |
| Ce                             | 24.4   | 22.3   | 22.3   | 20.8   | 18.5   | 18.3   | 17.3   | 21.0   | 22.2   | 30.6   | 24.4   |
| Co                             | 25.1   | 24.7   | 21.5   | 32.5   | 24.5   | 29.8   | 31.9   | 22.3   | 21.6   | 6.9    | 6.6    |
| Cr                             | 83.3   | 72.3   | 47.5   | 183.6  | 61.3   | 82.7   | 58.1   | 53.9   | 35.3   | 21.4   | 9.4    |
| Cs                             | 1.49   | 2.59   | 2.71   | 1.18   | 1.69   | 0.96   | 1.13   | 2.22   | 1.03   | 4.53   | 3.08   |
| Nb                             | 3.6    | 3.1    | 3.4    | 3.0    | 3.2    | 2.4    | 2.6    | 3.5    | 4.3    | 5.6    | 4.8    |
| Ni                             | 29.6   | 26.9   | 23.6   | 94.7   | 16.0   | 38.1   | 31.9   | 25.9   | 10.5   | 10.7   | 3.7    |
| Rb                             | 36.2   | 37.4   | 48.0   | 31.4   | 26.0   | 30.5   | 13.7   | 39.5   | 42.6   | 66.5   | 65.4   |
| Sc                             | 24.0   | 26.0   | 21.6   | 23.1   | 24.3   | 25.7   | 28.6   | 24.2   | 24.4   | 14.0   | 13.0   |
| Sr                             | 229    | 234    | 204    | 230    | 239    | 235    | 256    | 224    | 224    | 190    | 182    |
| Y                              | 27.2   | 34.3   | 29.7   | 16.1   | 27.2   | 24.0   | 15.4   | 28.7   | 34.1   | 33.8   | 27.3   |
| Zn                             | 40     | 51     | 44     | 48     | 62     | 62     | 77     | 60     | 65     | 37     | 29     |
| Zr                             | 144    | 132    | 156    | 110    | 129    | 113    | 103    | 135    | 149    | 220    | 207    |

1. かんらん石含有紫蘇輝石普通輝石安山岩 中の沢  
 2. かんらん石含有紫蘇輝石普通輝石安山岩 黒石林道支道  
 3. 紫蘇輝石普通輝石安山岩 石坂戸沢  
 4. 紫蘇輝石普通輝石かんらん石安山岩 湯の沢  
 5. かんらん石紫蘇輝石普通輝石安山岩 赤沢  
 6. 石英含有かんらん石紫蘇輝石普通輝石安山岩 叫沢  
 7. 石英含有かんらん石紫蘇輝石普通輝石安山岩 国道341号線大場谷地  
 8. 石英含有かんらん石紫蘇輝石普通輝石安山岩 叫沢  
 9. 石英含有紫蘇輝石普通輝石安山岩 黒石林道  
 10. かんらん石含有普通輝石紫蘇輝石サイト 梅森西方1354mピーク  
 17. 普通輝石紫蘇輝石サイト 鬼ヶ城 (Yoshida and Aoki<sup>10</sup>より引用)

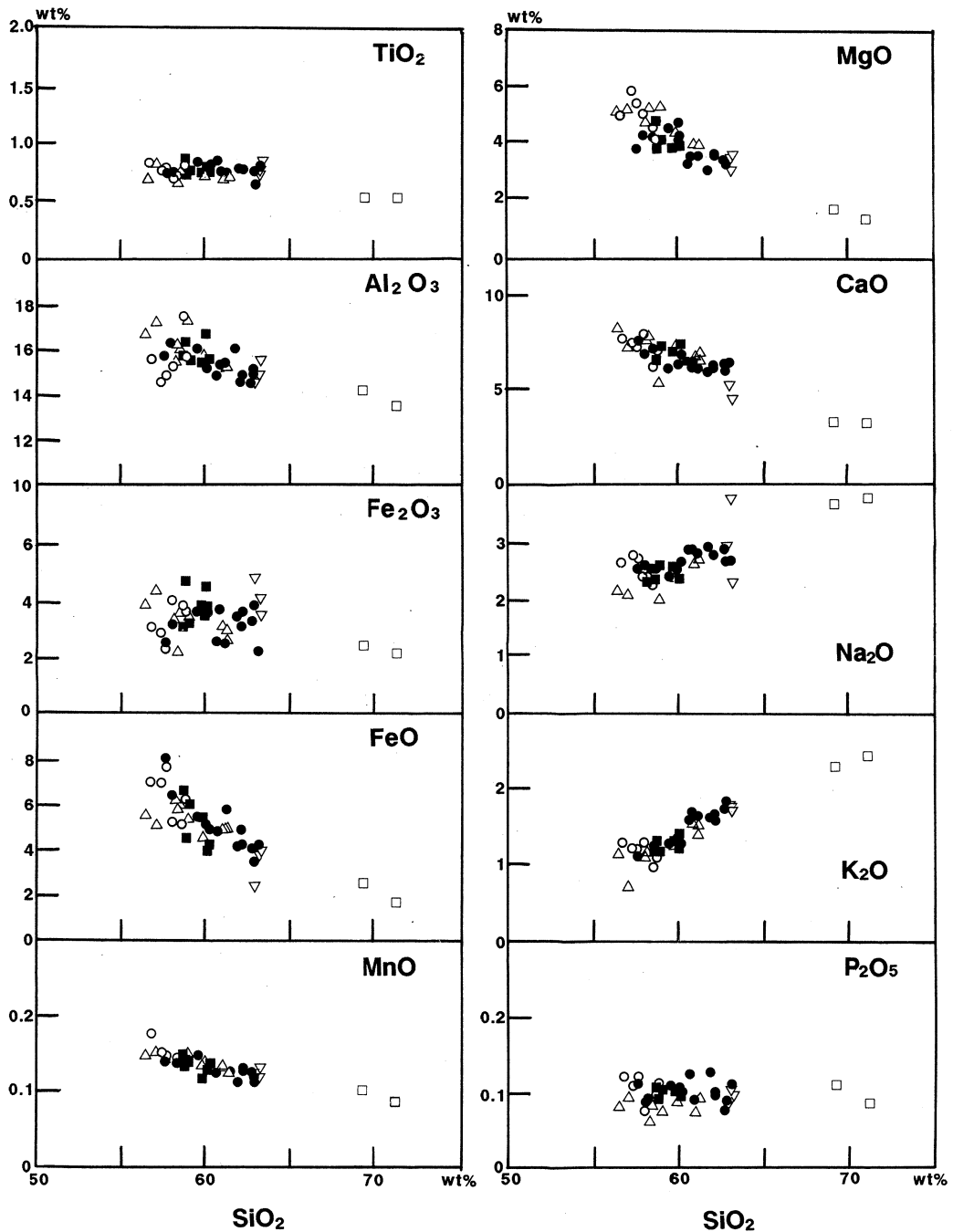
Yは一旦増加した後、減少しているように見える。なお、Csはばらつきが著しいが、SiO<sub>2</sub>の増加にともなって増加する傾向が認められる。新期噴出物-1には、CrならびにNiがきわだって高い値を示すサンプルがあるが、この試料はスピネルを包有するカンラン石斑晶に富んでいる。

## §6. 非平衡斑晶組合せとマグマ混合

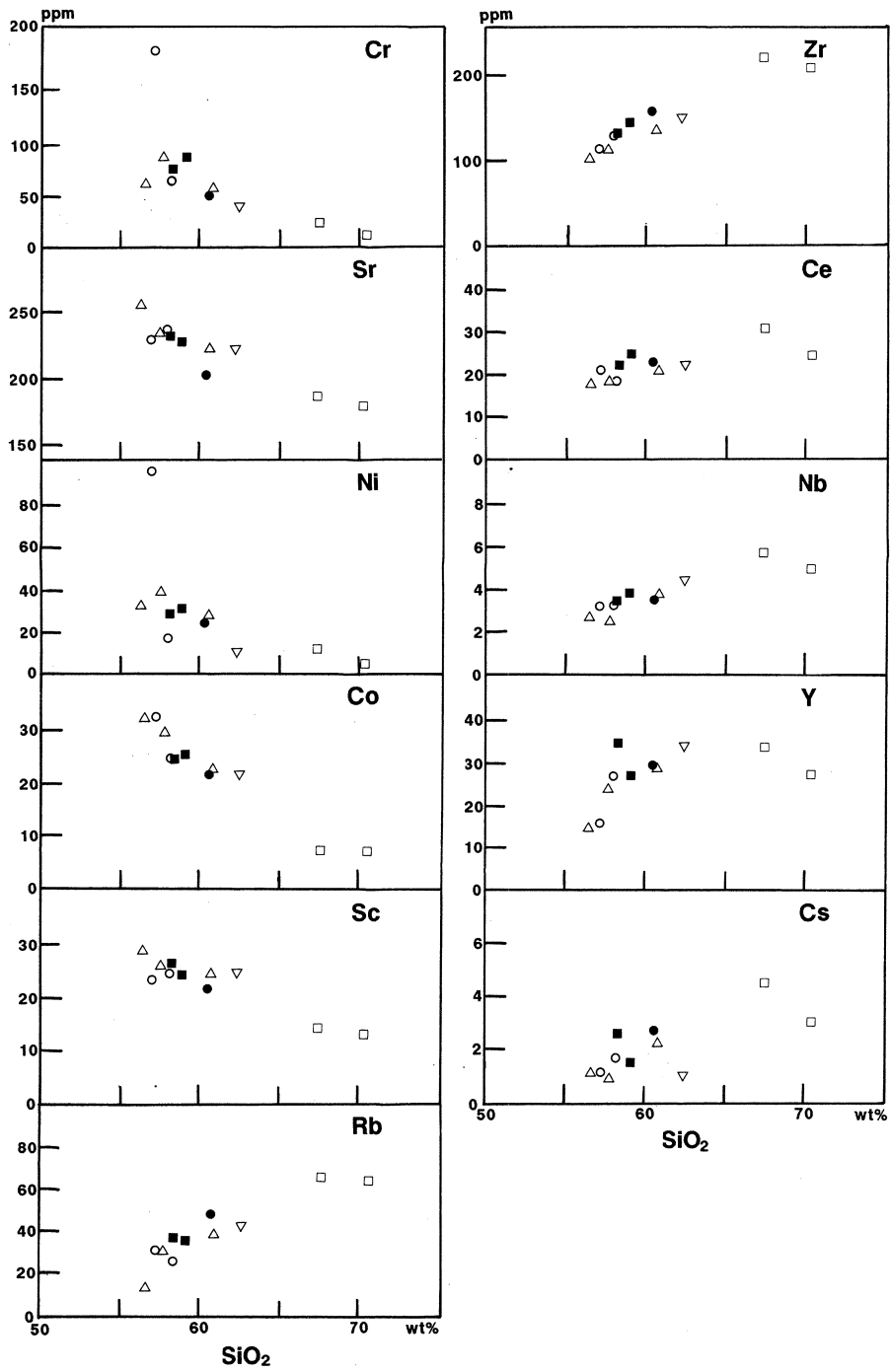
第8図に斑晶かんらん石と普通輝石の間のFe-Mg分配をしめす。これらが平衡に晶出したものであるならば、かんらん石と輝石のFe/(Fe+Mg)比はほぼ等しいか、かんらん石の方がやや鉄に富む<sup>6)</sup>。しかしながら、秋田焼山火山噴出物中のかんらん石斑晶を含むほとんどのサンプルにおいて、かんらん石斑晶は輝石斑晶に対して著しく鉄に乏しい。両斑晶鉱物間でのFe/(Fe+Mg)比の差は斑晶核部で最も大きい。それに対して、噴出直前、もしくは噴出時に生成したと思われる両斑晶の最外縁部(外側約100μm)どうしでは、その比が核部よりも1:1の線に近づいている。従って、これらのかんらん石斑晶と普通輝石斑晶の特に核部は、同一のマグマから互いに平衡に晶出したものではないことがわかる。これに対して、普通輝石、紫蘇輝石、斜長石ならびに鉄鉱はしばしば集斑晶をなしており、組成的にも同じマグマから晶出したと考えて問題はない。また、本火山を構成する安山岩については、鉱物組合せの異なる場合でも、輝石ならびに斜長石斑晶の特に核部の組成はあまり変わらない。ただし、かんらん石斑晶を持つ中期噴出物(M-b)、新期噴出物-1(L-1)、新期噴出物-2(L-2)中の普通輝石斑晶では、その最外縁部において核部よりもMgに富む傾向が認められる。同様に、斜長石斑晶中のダストゾーニング部においてAnに富む傾向も認められる。このような斜長石斑晶中のダストゾーニング部については、例えばマグマ混合に伴う急激な温度上昇によって生じたものであると考えられている<sup>7)</sup>。また、普通輝石の逆累帯構造や、組成的に非平衡関係を示す普通輝石-かんらん石斑晶の共存は、しばしばマグマ混合の証拠として挙げられる鉱物学的特徴である<sup>8)</sup>。これらのことから、中期噴出物のうちのかんらん石斑晶を含む安山岩(M-b)、ならびに同じくかんらん石斑晶を有する安山岩からなる新期噴出物-1(L-1)と新期噴出物-2(L-2)はマグマ混合の影響を受けていると考えられる。

## §7. 地殻物質の同化作用

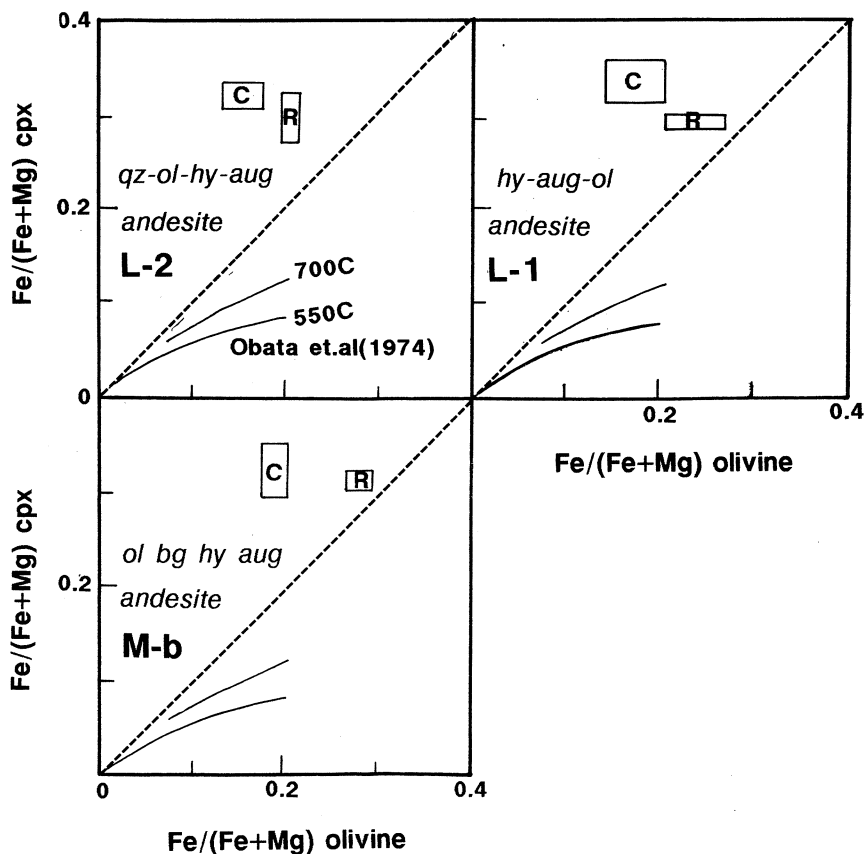
秋田焼山火山噴出物のうち、中期活動以降に形成された安山岩~デイサイトにおいては、その大部分は<sup>87</sup>Sr/<sup>86</sup>Sr比が0.7038~0.7039の間の値を示している<sup>9)</sup>。それに対して、新期活動



第6図  $\text{SiO}_2$  - 主成分組成変化図。  
 黒四角：古期噴出物，黒丸：中期噴出物  
 白丸：新期噴出物-1，三角：新期噴出物-2  
 逆三角：新期噴出物-3，白四角：新期噴出物-4



第7図  $\text{SiO}_2$  - 微量成分組成変化図。  
記号は第6図と同じ。



第8図 単斜輝石とかんらん石の間の Fe-Mg 分配。  
 550°C, 700°Cの線は Obata et.al<sup>6)</sup>によるかんらん石-単斜輝石が  
 平衡のときの値。Rは斑晶の縁辺部(外縁部約100 $\mu$ m)どうしの  
 関係, Cは核部どうしの関係を表わす。

のうち側噴火活動により形成された新期噴出物-2ならびに新期噴出物-3を構成する安山岩は他の活動期の噴出物に比較してより高い $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 比を持ち, その値の幅も広い(0.7039~0.7041)<sup>9)</sup>。

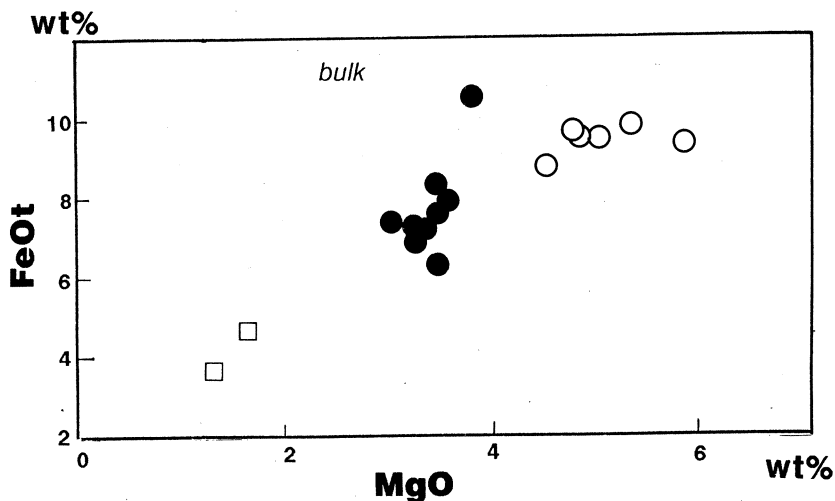
そのうち, 新期噴出物-2は, 新期噴出物-1と同様に斑晶かんらん石-輝石対は組成的に非平衡関係を示しており, さらに融食形の石英やNaに富んだパッチ状部を有する斜長石斑晶を含んでいる。このことから, 新期噴出物-2はマグマ混合に加えて, 安山岩質マグマ中への高 $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 物質の同化作用があったと推定され, 融食形石英やパッチ状斜長石はこの高

$^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$  物質に由来するものである可能性が強い。

新期噴出物-3を構成する安山岩も新期噴出物-2と同様に他の噴出物と比較して高い $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 比を持っている。ただし、新期噴出物-3においては、新期噴出物-2に認められた、かんらん石斑晶、ダストゾーニングを示す斜長石、融食された石英といったものは、現在のところ含まれていない。従って、本安山岩に関しては、少なくともマグマ混合があった証拠はいまのところ認められない。

### §8. 結晶分化トレンドとマグマ混合によるトレンド

第9図は秋田焼山火山噴出物についてのMgO-全鉄(FeOt)の変化図である。図中、黒丸はマグマ混合の影響を受けていないと思われるかんらん石斑晶を含まない中期活動に属する安山岩を示し、白四角は同じくマグマ混合の影響を受けていないと思われる新期噴出物-4に属するデイサイトである。それに対して、白丸は記載岩石学的にマグマ混合の証拠が認められたかんらん石斑晶を有する安山岩を示している。かんらん石斑晶を有する安山岩では、MgOが減少しても全鉄はほとんど減っていない。一方、かんらん石を含まない安山岩においてはMgOの減少に伴って全鉄が急激に減少している。デイサイトはこの全鉄の減少する組成変化経路の延長上にあるとみることが可能である。



第9図 MgO vs. 全鉄(FeOt)図。  
 黒丸：かんらん石斑晶を持たない中期噴出物(安山岩)，  
 白丸：新期噴出物-1(安山岩)，  
 四角：新期噴出物-4(デイサイト)。

このように、かんらん石を持たない安山岩とデイサイトが作る組成変化経路とかんらん石を持つ安山岩の示す組成変化経路との間に認められる相違は、前者が結晶分化作用を反映したものであるのに対して、後者がマグマ混合を反映したものであると考えることによって説明することができる。

## §9. 秋田焼山火山におけるマグマの進化過程

秋田焼山火山を構成する岩石のうち、古期活動の噴出物については中期活動以降の噴出物の成因的関連性がいまのところ不明である。一方、中期から新期活動にかけては、以上に述べたような岩石学的情報から以下のようなマグマの進化過程が推定される。

まず最初、中期活動の噴出物を構成する安山岩質マグマが現在の山体の下部に滞留していた。このマグマ溜り内では、斜長石 (An 58~75)、普通輝石、紫蘇輝石、磁鉄鉱、チタン鉄鉱が晶出していた。このマグマが中期活動によって地表に噴出し、山体の大部分を形づくった。先に述べたように、中期活動の噴出物にみられる全岩組成変化は、おもに斑晶鉱物の結晶分化作用によるものであろう。ただし、中期活動の噴出物中にも、かんらん石を少量含んだ安山岩がときに認められることから、一部の岩石において多少のマグマ混合作用が存在した可能性は否定できない。

新期活動にはいると、まず、新期噴出物-1の形成にあたっては、中期に活動した安山岩質マグマと一連のマグマに対して、Mgに富む苦鉄質マグマが混合したと考えられる。引き続き、新期噴出物-2の活動にあたっては、さらに、新期噴出物-1に相当する混合マグマに対して $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 比の高い物質の同化作用があったと考えられる。新期噴出物-1は中心噴火の産物であり、新期噴出物-2は側噴火の産物である。中心噴火のときはマグマが以前から存在していた火道を上昇してくるために混染作用はおきず、それに対して、側噴火の場合には火道を新たにつくるために周囲の岩石を取り込むような作用が起きたと考えられる。ただし、新期噴出物-2がマグマ混合を明瞭に示しているのに対して、同じように側噴火活動で形成され、高い $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 比を示す新期噴出物-3ではマグマ混合を示唆するような証拠は認められていない。

新期噴出物-4に属するデイサイトが示す $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 比は中期活動の噴出物とほぼ同じである。また、FeO<sub>t</sub> - MgO 図上では中期活動の噴出物が描く分化トレンドの延長上に位置する。このことから、新期噴出物-1, 2, 3の形成とは全く別に、中期活動の安山岩質マグマと一連のマグマから、新期噴出物-4のデイサイトが分化したのと考えられる。新期噴出物-1はMgO, Ni, Crがかなり高い値を示していることから、安山岩質マグマと混合した苦鉄質マ



グマは、MgO, Ni, Cr に富んだ未分化なマグマであったと考えられる。しかしながら、新期噴出物-1 が示す  $K_2O$ ,  $Na_2O$  量から判断すると、この未分化苦鉄質マグマはソレアイト質マグマではなく、比較的アルカリに富んだカルクアルカリ質マグマであった可能性が高い。

## § 10. さいごに

秋田焼山火山の活動は古期, 中期, 新期に大別でき, その噴出物は安山岩およびデイサイトからなる。中期および新期活動の噴出物について, 記載岩石学的特徴, 斑晶鉱物組成, ならびに全岩主成分~微量成分組成を検討した結果, 以下のようなことが明らかになった。

かんらん石斑晶をもつ安山岩(中期活動噴出物の一部, 新期噴出物-1, 新期噴出物-2)は非平衡な斑晶鉱物組合せを持ち, その形成にはマグマ混合が重要な役割を果たしたと考えられる。そのうち, 石英斑晶を含むものは  $^{87}Sr/^{86}Sr$  比が高い値を示しており, マグマ混合に加えて地殻物質の同化作用があったと考えられる。中期のかんらん石斑晶を持たない安山岩は新期噴出物-4 に属するデイサイトとともに結晶分化作用によると推定される一連の全岩組成変化経路を描いている。この組成変化経路はかんらん石含有安山岩が描くマグマ混合による組成変化経路とは明瞭に異なっている。また, 安山岩質マグマに対して混合した苦鉄質端成分は未分化なカルクアルカリ質マグマであったと推定される。

光量子放射化分析を行うにあたって, 東北大学核理研の榎本和義博士ならびにライナック・マシングループの方々には大変お世話になった。また, 東北大学岩鉱教室の藤巻宏和助教授, 長谷中利昭博士, 土谷信高博士, ならびに教養部地学科の蟹沢聰史教授, 石川賢一博士には, 諸般にわたって御助力頂き, また常日頃議論いただいている。特に石川賢一博士には野外調査にあたり大変お世話になった。なお, 本研究の一部に文部省科学研究費補助金 (No. 01302019) を使用した。以上の方々, ならびに当局に深謝する。

## 参 考 文 献

- 1) 須藤 茂: 火山, 第2集 31 (1986) 149.
- 2) 大場 司: 岩鉱 86 (1991) (印刷中)
- 3) 須藤 茂: 日本地質学会第93年学術大会要旨集 (1986) 369.
- 4) H. Fujimaki and K. Aoki: Sci.Rep. Tohoku Univ. ser. III 14 (1980) 261.
- 5) T. Yoshida, K. Masumoto and K. Aoki: J. Japan. Assoc. Min. Petr. Econ. Geol. 81

- (1986) 150.
- 6) M. Obata, S. Banno and T. Mori : Bull. Soc. Fr. Mineral. Crystallogr. **97** (1974) 101.
  - 7) A. Tsuchiyama and E. Takahashi : Contrib. Mineral. Petrol. **84** (1983) 345.
  - 8) M. Sakuyama : J. Petrol. **22** (1981) 553.
  - 9) 大場 司, 藤巻宏和, 青木謙一郎, : 1991年度地球惑星科学関連学会合同大会  
日本火山学会固有セッション講演予稿集 (1991) 43.
  - 10) T. Yoshida and K. Aoki : Sci. Rep. Tohoku Univ. Ser. III, **16** (1984) 1.

# Mass and temperature dependence of isotope effect for self-diffusion of copper and impurity-diffusion of copper in aluminum

S. -I. Fujikawa and S. Ushino

*Department of Materials Science, Tohoku University,  
Sendai 980, Japan*

The simultaneous diffusion of  $^{61}\text{Cu}$ ,  $^{64}\text{Cu}$  and  $^{67}\text{Cu}$  in aluminum and copper single crystals was measured using serial sectioning method, and the mass and temperature dependence of the isotope effect were investigated. The carrier-free isotopes  $^{61}\text{Cu}$ ,  $^{64}\text{Cu}$  and  $^{67}\text{Cu}$  were prepared by ourself using the photonuclear reaction. The strength of the isotope effect  $E$  for the self-diffusion and the impurity-diffusion of copper in aluminum were determined using  $\gamma$ -ray spectrometry in the temperature range between 1163 and 1351 K and between 694 and 926 K, respectively. The obvious difference was observed among the three diffusivities  $D_{61}$ ,  $D_{64}$  and  $D_{67}$  for the self-diffusion of copper but the mass dependence of  $E$  was negligibly small. On the other hand, the mass dependence of  $E$  for the impurity-diffusion of copper in aluminum was clearly observed. To our knowledge the present work is the first isotope effect experiment using the radioactive tracers for an element which shows successfully the mass dependence of isotope effect for volume diffusion by vacancy mechanism. The values of  $E$  for the self-diffusion of copper and impurity-diffusion of Cu in aluminum slightly increase with the increasing temperature and decrease drastically near the melting point of matrix metal, indicating that the contribution of divacancy mechanism can not be neglected. Our results were briefly discussed, in comparison with the theoretical calculations and the experimental results by other workers.

## § 1. Introduction

Isotope effect experiments can yield information on the diffusion mechanism and properties of the lattice defects involved in the diffusion process. The isotope effect is

defined by the relation

$$E \equiv [D_\alpha/D_\beta - 1] [(m_\beta/m_\alpha)^{1/2} - 1]^{-1} = f_\alpha \Delta K \quad (1)$$

Eq. (1) can be also written in another form as follows,

$$E = d(\ln D)/d(\ln m^{-1/2}) \text{ or } D (1/\sqrt{m})^E \quad (2)$$

Here  $E$  is the strength of the isotope effect,  $D_\alpha$ ,  $D_\beta$ ,  $m_\alpha$  and  $m_\beta$  are the tracer-diffusion coefficients and masses respectively of the isotopes  $\alpha$  and  $\beta$  of an element which diffuse simultaneously in a specimen,  $f_\alpha$  is the correlation factor of the operating diffusion mechanism, and  $\Delta K$  is called to be kinetic factor which corrects many body effects.  $\Delta K$  can be also expressed as follows<sup>1)</sup>,

$$\Delta K = d(\ln \omega)/d(\ln m^{-1/2}) \quad (3)$$

Here  $\omega$  is jump frequency of the diffusing atom. Eq. (1) is valid for several diffusion mechanisms for self-diffusion and impurity-diffusion in the fcc lattice via monovacancies and via divacancies. When the two mechanisms operates simultaneously,  $E$  is expressed as follows

$$E = D_{iv} f_{iv} \Delta K_{iv} / (D_{iv} + D_{2v}) + D_{2v} f_{2v} \Delta K_{2v} / (D_{1v} + D_{2v}) \quad (4)$$

where  $D_{1v}$ ,  $D_{2v}$ ,  $f_{1v}$  and  $f_{2v}$  are the diffusivity and the correlation factors for the diffusion by the two mechanisms, respectively (their dependence on isotopic mass is ignored), and  $\Delta K_{1v}$  and  $\Delta K_{2v}$  are the kinetic factors for diffusion by these two mechanisms.  $f_{1v}$  and  $f_{2v}$  in an fcc crystal have been calculated to be 0.781 and 0.468, respectively. Then, if  $E$  is independent of temperature, either only one mechanism of diffusion is operating or the relative contribution of the two mechanisms is independent of temperature, i. e., the activation energies for diffusion by divacancies and monovacancies are the same. If  $E$  decreases with increasing temperature, a significant divacancies contribution is indicated.

In the present work, the mass and temperature dependences for the self-diffusion of copper and the impurity-diffusion of copper in aluminum were investigated by the method of the simultaneous diffusion of three isotopes of copper  $^{61}\text{Cu}$ ,  $^{64}\text{Cu}$  and  $^{67}\text{Cu}$ . In the past, Rothman et al<sup>2),3)</sup> have studied the isotope effect for the above described two diffusion systems using  $^{64}\text{Cu}$  and  $^{67}\text{Cu}$ . However, their method have many problems in the purity of the radioisotopes, the counting technique and the analyzing method. Consequently, the values of  $E$  and the temperature dependence are considered not to be reliable. Fujikawa<sup>4),5),6)</sup>

has already explored the production method of  $^{61}\text{Cu}$ ,  $^{64}\text{Cu}$  and  $^{67}\text{Cu}$ , made the proposal of the experiment for the mass dependence of the isotope effect using these three isotopes of copper and made the preliminary experiment of the isotope effect for the self-diffusion of copper. The mass dependence of the isotope effect for a metal element using three isotopes with different mass has been scarcely studied owing to the very difficulty in availability of these isotopes. We can obtain the detailed information about  $\Delta K$  and  $f_a$  from the results of the mass dependence of the isotope effect for the self-diffusion and impurity-diffusion. A few of theoretical calculation<sup>7),8)</sup> has been carried out regarding the mass dependence of the isotope effect for the self-diffusion and impurity-diffusion by vacancy mechanism.

## § 2. Experimental procedures

### 2.1 Specimen preparation

Cylindrical single crystals of copper, 6 mm in diameter and aluminum, 13 mm in diameter were grown by Bridgman technique from polycrystalline rods with 99.999 mass % Cu and 99.9995 mass % Al. The monocrystalline was confirmed by back reflection Laue method. The specimens, 11 mm in height for diffusion studies were cut from the single crystals by a precision cutter. The specimens were pre-annealed to decrease the dislocation density and chemically pre-etched. The diffusion surface of each specimen was mechanically polished with diamond paste and then electropolished in the solution consisting of 10 % perchloric acid and 90 % ethylalcohol for aluminum and an aqueous solution containing 80 % phosphoric acid. The diffusion direction was parallel to  $\langle 332 \rangle$  of copper and  $\langle 221 \rangle$  of aluminum.

### 2.2 Production of carrier-free radioisotopes of $^{61}\text{Cu}$ , $^{64}\text{Cu}$ and $^{67}\text{Cu}$

The natural 99.9999 mass % Zn metal was used as the target for the production of three radioisotopes  $^{61}\text{Cu}$ ,  $^{64}\text{Cu}$  and  $^{67}\text{Cu}$ . Bremsstrahlung irradiation was carried out by means of the 300 MeV linear accelerator (Linac) of Tohoku University. The Linac was operated mainly in the irradiation condition of 60 MeV for  $3.6 \times 10^4$  s. The quartz tube containing the target was placed horizontally on the axis of the electron beam in close contact with the back of a Pt converter 2 mm thick cooled by running tap water. The

carrier-free radioisotopes were prepared using the photonuclear reactions  $^{64}\text{Zn}(\gamma, p2n)^{61}\text{Cu}$ ,  $^{66}\text{Zn}(\gamma, pn)^{64}\text{Cu}$  and  $^{68}\text{Zn}(\gamma, p)^{67}\text{Cu}$ . The chemical separation of the Cu radioisotopes from Zn metal was carried out in the following sequence: dissolving of irradiated Zn metal with conc. HCl, solvent extraction with  $(\text{C}_4\text{H}_7)_3\text{NO}_3$  pretreated with 2 N HCl (repeated 3 times), elution through anion exchange resin pretreated with 2 N HCl and production of copper chloride by dry up. Fig. 1 shows the  $\gamma$ -ray spectrum of the radioisotopes  $^{61}\text{Cu}$ ,  $^{64}\text{Cu}$  and  $^{67}\text{Cu}$  after the chemical separation is finished, indicating that the purification is successfully made.

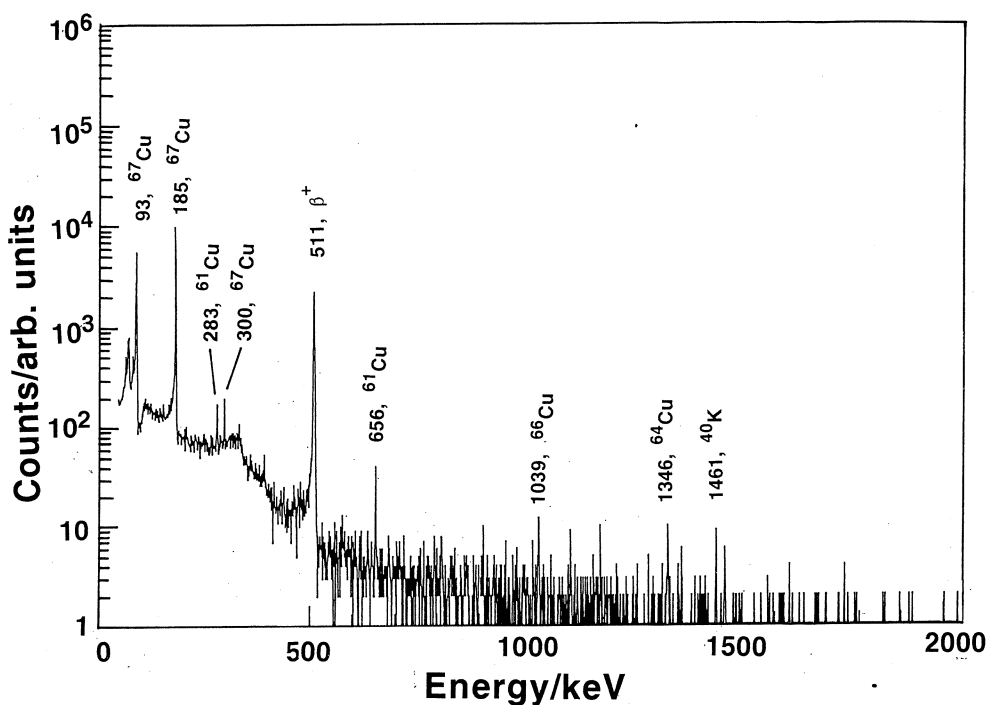


Fig. 1  $\gamma$ -ray spectrum measured for finally purified radioactive tracers of copper.

### 2.3 Diffusion experiment

The radioisotopes were electroplated on the polished mirror-like surface of the specimen in the following condition: the electrolyte, an aqueous solution containing  $\text{Na}_4\text{P}_2\text{O}_7$  ( $0.16 \text{ mol/dm}^3$ ) and  $\text{Na}_2\text{HPO}_4$  ( $0.10 \text{ mol/dm}^3$ ) neutralized with  $\text{H}_3\text{PO}_4$ ; temperature, about 340 K; electrode potential, about 5 V; current density, about  $1 \text{ kA/m}^2$ .

The thickness of the tracer layer was less than about 10 nm. The diffusion anneal was carried out in the temperature range between 1163 and 1351 K for copper and between 694 and 926 K for aluminum. Diffusion specimens were sealed in a quartz tube containing high purity He gas to avoid the oxidation and the vaporization of the radioactive tracers during diffusion annealing. After diffusion annealing, the specimens were reduced in diameter by mechanical grinding to remove the zone affected by the surface diffusion and the vaporization of the radioactive tracers. The specimens were sectioned using a precision microtome. The concentration of three isotopes were separately determined by counting the 185 keV  $\gamma$ -peak of  $^{61}\text{Cu}$ , the 511 keV  $\gamma$ -peak of  $^{64}\text{Cu}$  and the 655  $\gamma$ -peak of  $^{67}\text{Cu}$  using a Ge(Li) detector and multichannel analyzer. Fig. 2 shows the  $\gamma$ -ray peak for  $^{61}\text{Cu}$ ,  $^{64}\text{Cu}$  and  $^{67}\text{Cu}$  used in the present work. A half-life correction and background correction were applied for each isotopes. The main difficulty in the present experiment was to determine the relative activities of the three isotopes with sufficient accuracy which required good counting statistics.

### §3. Results and discussion

The appropriate solution of Fick's second law for the initial condition of thin-film is

$$c = \text{const.} \exp(-X_n^2 / 4D^T \cdot t) \quad (5)$$

where  $c$  is the specific activity of a section, the center of which is  $X_n$  from the original surface,  $D^T$  the tracer diffusivity and  $t$  the diffusion time. The values of  $D^T$  were determined by the serial-sectioning method using eq. (5). If eq. (5) is written for the simultaneous diffusion of isotopes  $\alpha$  and  $\beta$ , one obtains

$$\ln(c_{\alpha i} / c_{\beta i}) = \text{const.} + [1 - (D_\alpha / D_\beta)] \ln c_{\alpha i} \quad (6)$$

where  $c_{\alpha i}$  and  $c_{\beta i}$  are the specific activities of the isotopes  $\alpha$  and  $\beta$  of isotopic mass  $m_\alpha$  and  $m_\beta$ , respectively, in the  $i$ -th section. Thus isotope effect experiments require an accurate determination of  $c_{\alpha i} / c_{\beta i}$ . The value of  $[1 - (D_\alpha / D_\beta)]$  can be obtained from the plot of  $\ln(c_{\alpha i} / c_{\beta i})$  vs.  $\ln c_{\alpha i}$ . Combining the value with eq. (1), we can obtain the strength of the isotope effect  $E$ . In the present work,  $c_{\alpha i}$  and  $c_{\beta i}$  were determined independently from the net peak area for  $^{61}\text{Cu}$ ,  $^{64}\text{Cu}$  and  $^{67}\text{Cu}$  shown in Fig. 2. Fig. 3 shows the typical penetration profiles plot of diffusion of  $^{67}\text{Cu}$  in copper to measure the isotope

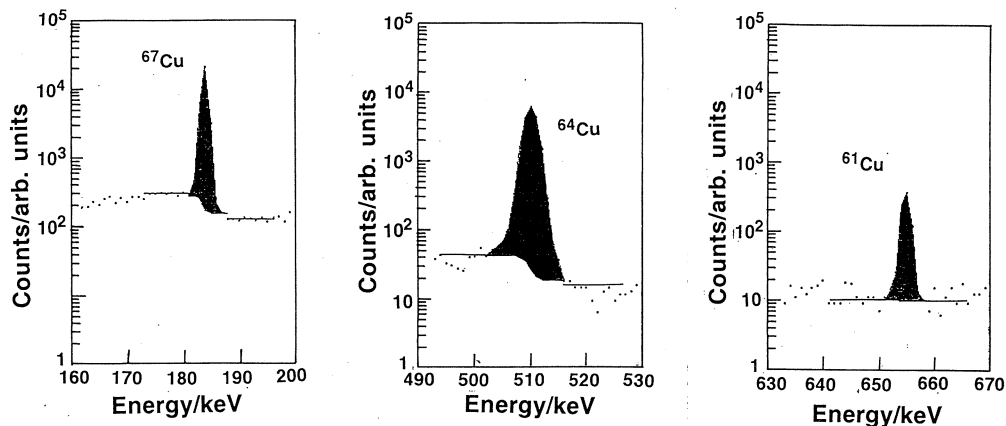


Fig. 2 Net  $\gamma$ -peak area used for diffusion study (a) 185 keV ( $^{61}\text{Cu}$ ), (b) 511 keV ( $^{64}\text{Cu}$ ) and (c) 655 keV ( $^{67}\text{Cu}$ ).

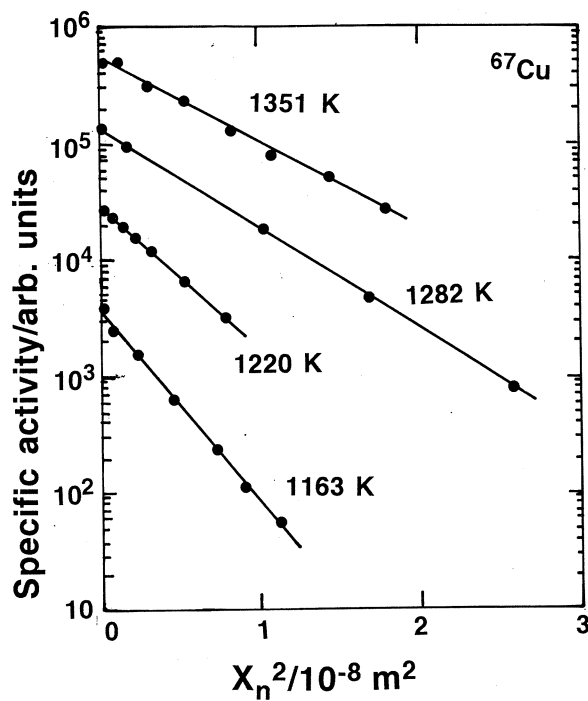


Fig. 3 Penetration profiles of diffusion of  $^{61}\text{Cu}$  in copper single crystals.

effect of the self-diffusion in copper. The self-diffusivities were determined from the slope using eq. (5) and are given in Table 1, along with other work<sup>5,9</sup>. Fig.4 shows the temperature dependence of the self-diffusivities obtained in the present work, in comparison with



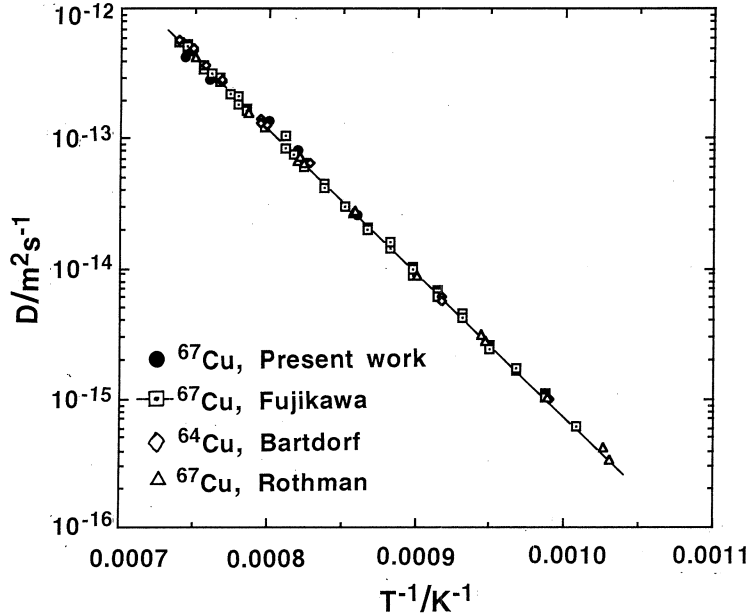


Fig. 4 Temperature dependence of self-diffusivities of copper obtained in the present work along with previous works.

other works<sup>2),10),11)</sup>. The agreement with the previous results gives us confidence in the isotope effect data presented here. Fig. 5 shows the examples of the experimental plots of  $\text{Log}(c_{67}/c_{61})$  or  $\text{Log}(c_{67}/c_{64})$  vs.  $\text{Log} c_{67}$ . Null-effect experiments showed zero slopes within the error of the measurements. The values of  $[1 - (D_{67}/D_{61})]$ ,  $[1 - (D_{67}/D_{64})]$  and  $E$  obtained from the slopes in Fig. 5 are given in Table 1, in comparison with the previous works<sup>2),5)</sup>. The values of  $D_{61}$  and  $D_{64}$  below about 1250 K in the present work is larger than the value of  $D_{67}$  about 3.5 and 1.7 %, respectively. The mass dependence of  $E$  is negligibly small. However, it is interesting that below 1282 K the value of  $E$  obtained using the pair of  $^{67}\text{Cu}$  and  $^{64}\text{Cu}$  is somewhat larger than the value using the pair of  $^{67}\text{Cu}$  and  $^{63}\text{Cu}$ . It seems that the mass difference reflects the jump frequency of the diffusing atoms. Fig. 6 shows the temperature dependence of  $\bar{E}$  obtained in the present work, along with the result by Rothman et al<sup>2)</sup>. According to their results the value of  $E$  is independent of temperature within experimental error. On the other hand, in our result the temperature dependence was obviously observed. Our value of  $E$  below 1250 K is larger than the value by Rothman et al. and our value decreases with the increasing temperature. Since they

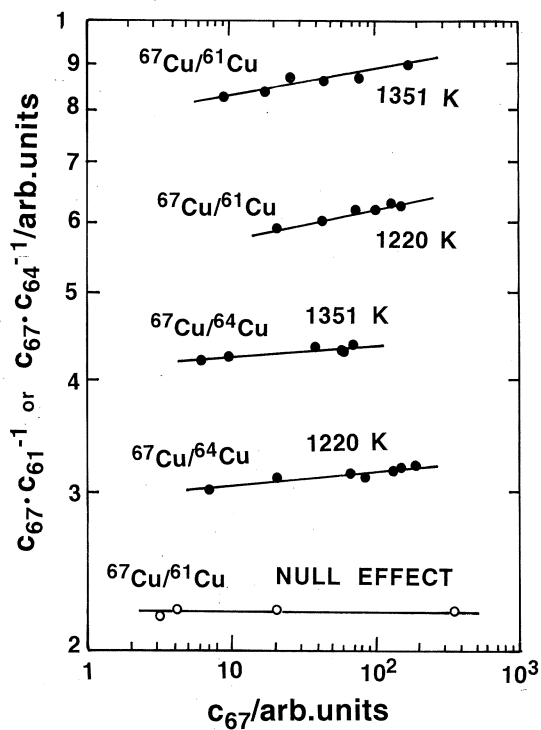


Fig. 5 Typical  $\text{Log } (C_{67}/C_{61})$  or  $\text{Log } (C_{67}/C_{64})$  vs  $\text{Log } c_{67}$  plots for isotope effect experiments of self-diffusion of copper.

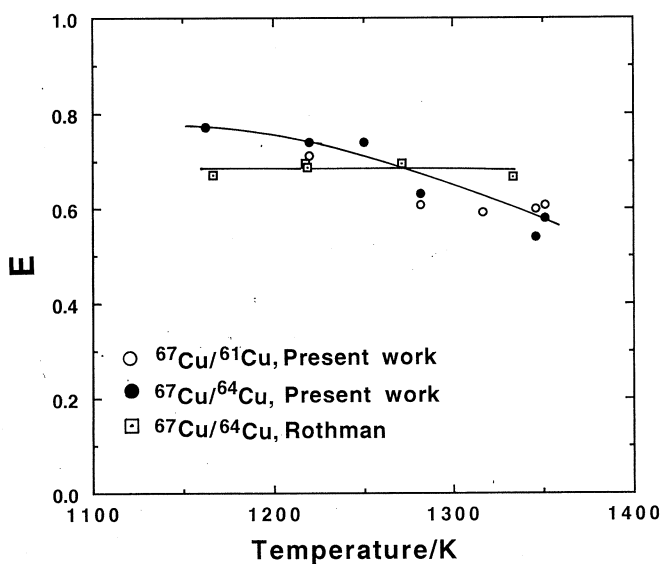


Fig. 6 Temperature dependence of strength of isotope effect for self-diffusion of copper together with Rothman's results.

determined the value of  $E$  using the so-called half-decay method with Na(Tl) detector, their data have some problems in the view of the reliability. Taking  $f_a=0.782$  in eq. (1), the values of  $\Delta K$  in eq. (1) were calculated for all data in Table 1 and given in Table 1. Our values of  $\Delta K$  below 1220 K are nearly equal to 0.9, in good agreement with the

Table 1 Diffusion and isotope effect for self-diffusion of copper.

| $T(K)$ | Time(s)            | $D$ ( $m^2s^{-1}$ )               | $[1 - (D_{67}/D_{63})]$ | $E$ for $^{67}Cu/^{63}Cu$<br>( $\Delta K$ ) | $[1 - (D_{67}/D_{63})]$                          | $E$ for $^{67}Cu/^{64}Cu$<br>( $\Delta K$ ) | Worker       |
|--------|--------------------|-----------------------------------|-------------------------|---|--|---|--------------|
| 1351   | $2.59 \times 10^3$ | $(5.61 \pm 0.22) \times 10^{-13}$ | $0.0293 \pm 0.0024$     | $0.61 \pm 0.05$<br>(0.781)                  | $0.0134 \pm 0.0012$                              | $0.58 \pm 0.05$ (0.743)                     | Present work |
| 1346   | $2.60 \times 10^3$ | $(4.34 \pm 0.23) \times 10^{-13}$ | $0.0288 \pm 0.0024$     | $0.60 \pm 0.05$<br>(0.768)                  | $0.0125 \pm 0.0021$                              | $0.54 \pm 0.09$ (0.691)                     | Present work |
| 1316   | $4.20 \times 10^3$ | $(2.82 \pm 0.15) \times 10^{-13}$ | $0.0283 \pm 0.0024$     | $0.59 \pm 0.05$<br>(0.755)                  | *  | *   | Present work |
| 1282   | $6.04 \times 10^3$ | $(2.09 \pm 0.10) \times 10^{-13}$ | $0.0293 \pm 0.0033$     | $0.61 \pm 0.07$<br>(0.781)                  | $0.0146 \pm 0.0021$                              | $0.63 \pm 0.09$ (0.807)                     | Present work |
| 1250   | $8.05 \times 10^3$ | $(1.38 \pm 0.07) \times 10^{-13}$ | $0.0355 \pm 0.0029$     | $0.74 \pm 0.06$<br>(0.947)                  | $0.0171 \pm 0.0016$                              | $0.74 \pm 0.07$ (0.948)                     | Present work |
| 1220   | $1.01 \times 10^4$ | $(7.96 \pm 0.41) \times 10^{-14}$ | $0.0341 \pm 0.0024$     | $0.71 \pm 0.05$<br>(0.909)                  | $0.0171 \pm 0.0012$                              | $0.74 \pm 0.05$ (0.948)                     | Present work |
| 1163   | $2.50 \times 10^4$ | $(2.59 \pm 0.14) \times 10^{-14}$ | *                       | *   | $0.0178 \pm 0.0012$                              | $0.77 \pm 0.05$ (0.986)                     | Present work |
| 1350   | $3.42 \times 10^3$ | $5.46 \times 10^{-13}$            | 0.0358                  | 0.746<br>(0.955)                            |  |   | Fujikawa     |
| 1167   | $6.48 \times 10^4$ | $2.70 \times 10^{-14}$            |                         |   | $0.0152 \pm 0.00043$<br>(0.0156 $\pm$ 0.00044) # | $0.673 \pm 0.019$ (0.862)                   | Rothman      |
| 1218   | $4.86 \times 10^4$ | $7.32 \times 10^{-14}$            |                         |   | $0.0157 \pm 0.00041$<br>(0.0161 $\pm$ 0.00042) # | $0.695 \pm 0.018$ (0.890)                   | Rothman      |
| 1219   | $5.69 \times 10^4$ | $6.84 \times 10^{-14}$            |                         |   | $0.0156 \pm 0.00024$<br>(0.0156 $\pm$ 0.00025) # | $0.690 \pm 0.011$ (0.883)                   | Rothman      |
| 1271   | $6.77 \times 10^4$ | $1.58 \times 10^{-13}$            |                         |   | $0.0157 \pm 0.00015$<br>(0.0161 $\pm$ 0.00016) # | $0.695 \pm 0.007$ (0.883)                   | Rothman      |
| 1333   | $5.75 \times 10^4$ | $4.30 \times 10^{-13}$            |                         |   | $0.0151 \pm 0.00019$<br>(0.0155 $\pm$ 0.00019) # | $0.668 \pm 0.008$ (0.855)                   | Rothman      |

\* not determined owing to the low activity of  $^{61}Cu$  or  $^{64}Cu$ .

# recalculated in the present work.

theoretical value (0.96<sup>12</sup>, 0.92<sup>13</sup>, 0.98<sup>14</sup>) for monovacy mechanism in copper, indicating that our values of  $E$  below 1220 K correspond to the monovacy mechanism in copper. The low value of  $\Delta K$  at higher temperatures obtained assuming  $f_a=0.782$  can not be explained by only monovacancy mechanism. In this case the contribution from the divacancy mechanism can not be ignored and consequently our results can be explained by eq. (2). Fig. 7 shows the typical penetration curves of the diffusion of <sup>67</sup>Cu in aluminum done for the

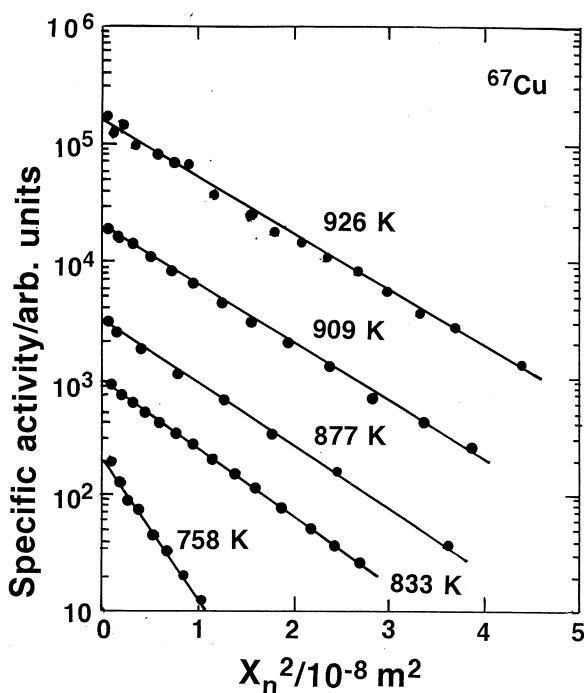


Fig. 7 Penetration profiles for diffusion of <sup>67</sup>Cu in aluminum single crystals.

isotope effect experiment, indicating the good linear relation holds. The values of the impurity-diffusivities calculated using eq. (5) are given in Table 2. Fig. 8 shows the temperature dependence of the impurity-diffusivities of copper in aluminum obtained in the present work together with the previous works, indicating that our values agree well with other works<sup>6,15</sup>. Fig. 9 shows the examples of  $\text{Log}(c_{67}/c_{61})$  or  $\text{Log}(c_{67}/c_{64})$  vs.  $\text{Log} c_{67}$  plots for the impurity-diffusion of copper in aluminum. The values of  $[1 - (D_{67}/D_{61})]$ ,  $[1 - (D_{67}/D_{64})]$  and  $E$  were calculated from the slope in Fig. 9 using eq. (6) and eq. (1) and given in Table 2, in comparison with Rothman's data<sup>3</sup>. Our values of  $E$  is greatly

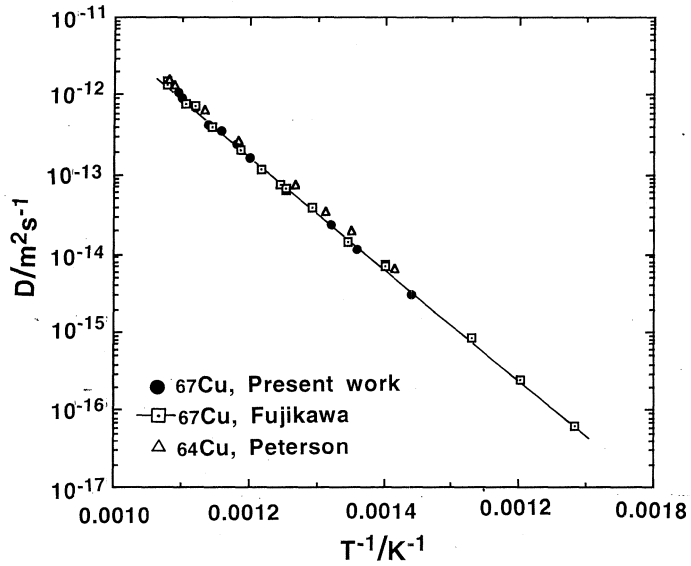


Fig. 8 Temperature dependence of impurity-diffusivities of copper in aluminum, in comparison with other works.

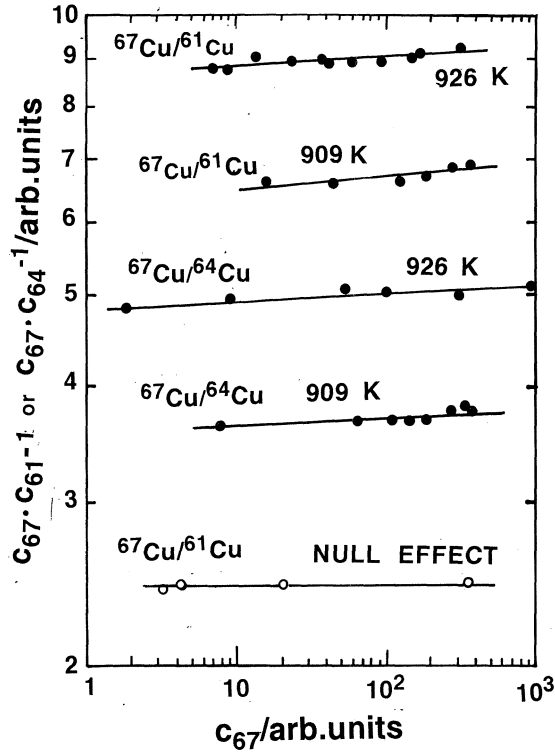


Fig. 9 Typical  $\text{Log}(c_{67}/c_{61})$  or  $\text{Log}(c_{67}/c_{64})$  vs.  $\text{Log} c_{67}$  plots for isotope effect experiments of impurity-diffusion of copper in aluminum.

Table 2 Diffusion and isotope effect for impurity-diffusion of copper in aluminum.

| $T(K)$ | Time(s)            | $D$ ( $m^2s^{-1}$ )               | $[1 - (D_{67}/D_{61})]$ | $E$ for $^{67}Cu/^{61}Cu$ | $[1 - (D_{67}/D_{61})]$ | $E$ for $^{67}Cu/^{64}Cu$ | Worker       |
|--------|--------------------|-----------------------------------|-------------------------|---------------------------|-------------------------|---------------------------|--------------|
| 926    | $1.69 \times 10^3$ | $(1.35 \pm 0.04) \times 10^{-12}$ | $0.0091 \pm 0.0019$     | $0.19 \pm 0.04$           | $0.0072 \pm 0.0009$     | $0.31 \pm 0.04$           | Present work |
| 913    | $2.10 \times 10^3$ | $(1.08 \pm 0.04) \times 10^{-12}$ | $0.0106 \pm 0.0019$     | $0.22 \pm 0.04$           | $0.0081 \pm 0.0021$     | $0.35 \pm 0.09$           | Present work |
| 909    | $2.06 \times 10^3$ | $(9.33 \pm 0.35) \times 10^{-13}$ | $0.0120 \pm 0.0019$     | $0.25 \pm 0.04$           | $0.0107 \pm 0.0009$     | $0.46 \pm 0.04$           | Present work |
| 893    | $3.24 \times 10^3$ | $(6.89 \pm 0.29) \times 10^{-13}$ | $0.0120 \pm 0.0024$     | $0.25 \pm 0.05$           | $0.0118 \pm 0.0021$     | $0.51 \pm 0.09$           | Present work |
| 877    | $4.00 \times 10^3$ | $(4.28 \pm 0.18) \times 10^{-13}$ | $0.0149 \pm 0.0024$     | $0.31 \pm 0.05$           | $0.0111 \pm 0.0014$     | $0.48 \pm 0.06$           | Present work |
| 873    | $4.10 \times 10^3$ | $(4.06 \pm 0.18) \times 10^{-13}$ | *                       | *                         | $0.0123 \pm 0.0021$     | $0.53 \pm 0.09$           | Present work |
| 862    | $3.30 \times 10^3$ | $(3.52 \pm 0.14) \times 10^{-13}$ | *                       | *                         | $0.0120 \pm 0.0021$     | $0.52 \pm 0.09$           | Present work |
| 847    | $1.20 \times 10^3$ | $(2.45 \pm 0.09) \times 10^{-13}$ | *                       | *                         | $0.0114 \pm 0.0009$     | $0.49 \pm 0.04$           | Present work |
| 833    | $8.27 \times 10^2$ | $(1.68 \pm 0.09) \times 10^{-13}$ | $0.0163 \pm 0.0024$     | $0.34 \pm 0.05$           | $0.0118 \pm 0.0014$     | $0.51 \pm 0.06$           | Present work |
| 758    | $3.00 \times 10^4$ | $(2.34 \pm 0.11) \times 10^{-14}$ | *                       | *                         | $0.0102 \pm 0.0014$     | $0.44 \pm 0.06$           | Present work |
| 738    | $5.00 \times 10^4$ | $(1.15 \pm 0.07) \times 10^{-14}$ | *                       | *                         | $0.0095 \pm 0.0014$     | $0.41 \pm 0.06$           | Present work |
| 694    | $2.00 \times 10^5$ | $(3.07 \pm 0.19) \times 10^{-15}$ | *                       | *                         | $0.0109 \pm 0.0014$     | $0.47 \pm 0.06$           | Present work |
| 930    | $3.46 \times 10^3$ | $1.7 \times 10^{-12}$             |                         |                           | $(0.0189 \pm 0.0012)$ # | $0.814 \pm 0.050$         | Rothman      |
| 858    | $7.06 \times 10^3$ | $3.45 \times 10^{-13}$            |                         |                           | $(0.0206 \pm 0.0012)$ # | $0.890 \pm 0.050$         | Rothman      |

\* not determined owing to the low activity of  $^{61}Cu$ .

# calculated in the present work.

different from Rothman's values. The difference can be attributed to the inadequate experimental procedures of the latter as already described. From the values of  $D_{67}/D_{61}$  and  $D_{64}/D_{61}$  in the present work, it can be said that the change by mass of the impurity-diffusivities is not large, compared with the self-diffusivities of copper shown in Table 1. Fig. 10 shows the temperature dependence of  $E$  for the impurity-diffusion of copper in aluminum. The mass dependence of  $E$  is clearly observed. To our knowledge, such a result was obtained for the first time in the present work for the impurity-diffusion experiment using radioactive tracers and it is theoretically also very interesting. Assuming no mass dependence of the value of  $f_a$  in eq. (1), the value of  $\Delta K$  depends upon the mass of the diffusing atom and the value of  $\Delta K$  decreases with the increasing mass of the diffusing atom. The result agrees with the theoretical calculation<sup>7)</sup> on the isotope effect of the impurity-diffusion. Fig. 10 shows that below 893 K the value of  $E$  increases with the increase in temperature and abruptly decreases near the melting point of aluminum. The

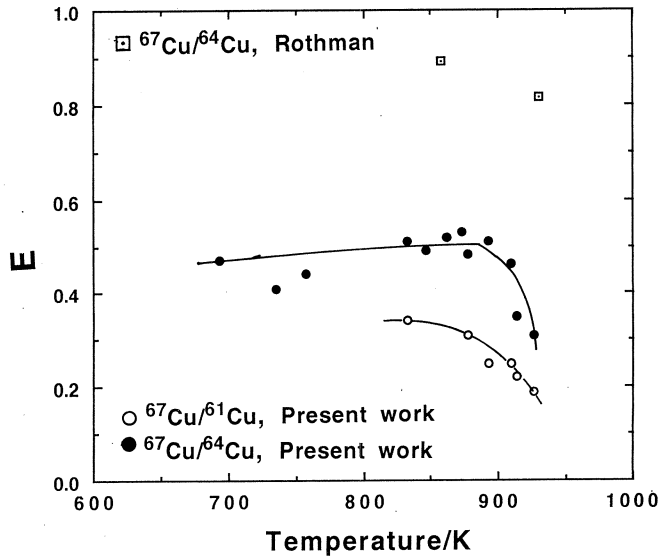


Fig. 10 Temperature dependence of isotope effect for impurity-diffusion of copper in aluminum, in comparison with Rothman's results.

latter result indicates that the existence of the contribution from the divacancy mechanism can not be ignored for the impurity-diffusion of copper in aluminum near the melting point. However, as shown in Fig. 8, it is not easy to find the non-linear behavior of the Arrhenius plot. It is necessary to analyze the discrepancy. Fig. 11 shows the comparison of temperature dependence for the diffusion of Ag, Cu, Zn and Fe in aluminum. Below about 900 K the value of  $E$  for Ag, Zn and Cu ( $^{67}\text{Cu}-^{64}\text{Cu}$  pair) are nearly equal to the value from 0.4 to 0.5 and the temperature dependence is similar. Above about 900 K the values of  $E$  for Cu and Fe drastically decrease with the increase in temperature. It is very interesting why the value of  $E$  for Ag and Zn do not decrease near the melting point of aluminum.

#### §4. Conclusions

The difference in self-diffusivities between  $^{61}\text{Cu}$ ,  $^{64}\text{Cu}$  and  $^{67}\text{Cu}$  in copper was clearly observed but the mass dependence for the strength of isotope effect ( $E$ ) is negligibly small. The value of  $E$  gradually decreases with the increasing temperature near the melting point of copper, indicating the contribution from divacancy mechanism. The value of kinetic

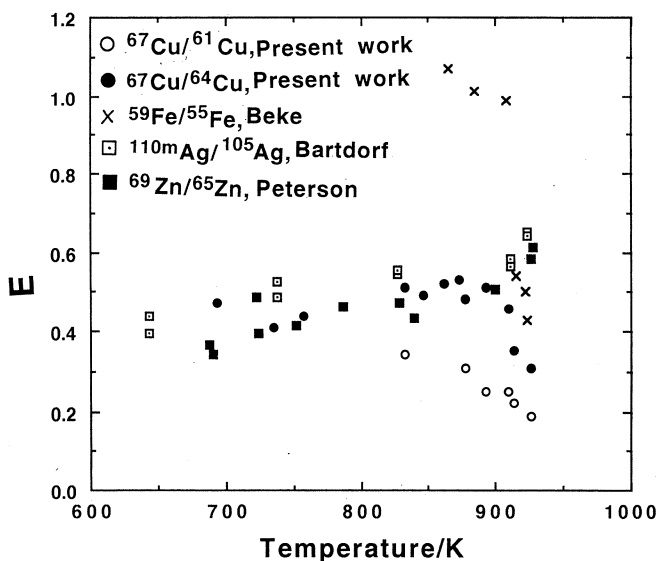


Fig. 11 Temperature dependence of strength of isotope effect for impurity-diffusion of Cu, Fe, Ag and Zn in aluminum.

energy factor  $\Delta K$  in the temperature range where monovacancy mechanism mainly operates is equal to about 0.9, in good agreement with the theoretical value. The result shows that the value of  $E$  obtained in the present work is more reasonable than Rothman's result. The difference in  $D_{67}$ ,  $D_{64}$  and  $D_{67}$  for the impurity-diffusion of copper in aluminum is not large but the mass dependence of  $E$  is clearly observed, in good agreement with the calculation by Feit's theory. The values of  $E$  obtained using the  $^{67}\text{Cu}-^{64}\text{Cu}$  pair for the impurity-diffusion of copper in aluminum take the value from 0.4 to 0.6 at lower temperature than about 900 K. Above 900 K the value of  $E$  abruptly decreases with the rise in temperature. The interesting mass dependence observed in the present work requires more detailed investigation.

### Acknowledgements

We thank Dr. K. Masumoto for the experimental suggestion in the preparation of the radioisotopes of copper. We further acknowledge Prof. K. Hirano and Prof. A. Seeger for the discussion. The present work was supported by the Light Metal Educational Foundation Inc. and Grant in Aid (No. 62850118) from the Japanese Ministry of Educa-



tion, Science and Culture.

### References

- 1) G. H. Vineyard : J. Phys. Chem. Solids **3** (1957) 121.
- 2) S. J. Rothman and N. L. Peterson : Phys. Stat. sol. **35** (1969) 305.
- 3) N. L. Peterson and S. J. Rothman : Phys. Rev. **B17** (1978) 4666.
- 4) S. -I. Fujikawa : Res. Rep. Lab. Nucl. Sci. Tohoku Univ. **12** (1979) 229.
- 5) S. -I. Fujikawa : Res. Rep. Lab. Nucl. Sci. Tohoku Univ. **15** (1982) 273.
- 6) S. -I. Fujikawa and K. Hirano : Defect and Diffusion Forum **66-69** (1989) 447.
- 7) M. D. Feit : Phys. Rev. **B5** (1972) 2145.
- 8) J. J. Burton : Phys. Rev. **B9** (1970) 1200.
- 9) S. J. Rothman and N. L. Peterson : Phys. Stat. Sol. **35** (1969) 305.
- 10) S. -I. Fujikawa and K. Hirano : Res. Rep. Lab. Nucl. Sci. Tohoku Univ. **15** (1982) 127.
- 11) D. Bartsdorf, G. Neumna and P. Reimers : Phil. Mag. **A38** (1978) 157.
- 12) J. J. Burton : Phys. Rev. **B9** (1974) 1200.
- 13) R. C. Brown, J. Worster, N. H. March, R. C. Perrin and R. Bullough : Z. Natur. **A26** (1971) 77.
- 14) H. B. Huntigton, M. D. Feit and D. Lortz : Cryst. Lattice Defects **1** (1972) 193.
- 15) N. L. Peterson and S. J. Rothman : Phys. Rev. **B1** (1970) 3264.

# Impurity-diffusion of manganese in aluminum and analysis of interdiffusion experiments in Al/Mn artificial multilayered films

S.-I. Fujikawa and Y. Nishihata<sup>†</sup>

*Department of Materials Science, Tohoku University, Sendai 980, Japan*

<sup>†</sup>*Department of Physics, Okayama University, Okayama 700, Japan*

Carrier-free  $^{54}\text{Mn}$  was prepared using the photonuclear reaction  $^{56}\text{Fe}(\gamma, \text{pn})^{54}\text{Mn}$  and its diffusivities in aluminum were determined by the serial-sectioning method in the temperature range between 843 and 927 K. The temperature dependence of the impurity diffusion coefficients of Mn in aluminum is given by the following equation :

$$D_{\text{Mn}/\text{Al}} = 3.17 \times 10^{-2} \exp(-217 \text{kJ mol}^{-1}/RT) \text{m}^2\text{s}^{-1}$$

Effective interdiffusivities were determined from the results of the interdiffusion experiment in the temperature range between 473 and 773 K in artificial Al/Mn multilayered films which were prepared by molecular beam epitaxy. The change with annealing time in the intensity of the first-order peak in small angle region of X-ray diffraction resulting from the composition modulation is used to determine the interdiffusivities. The effective interdiffusivity ( $3.90 \times 10^{-24} \text{m}^2\text{s}^{-1}$ ) at 473 K, corresponding to the interdiffusion in dilute Al-Mn alloy agrees nearly with the extrapolation of the high temperature diffusion data. The effective interdiffusivities, corresponding to the reactive diffusion accompanying intermetallic compound  $\text{Al}_6\text{Mn}$  above 573 K have lower values several order of magnitude than the extrapolation of the high temperature data and have an Arrhenius type temperature dependence with an activation energy  $145 \text{kJ mol}^{-1}$ .

## §1. Introduction

Manganese is one of the important alloying elements in the commercial Al alloys. The diffusion data of Mn in aluminum are very useful in analyzing the various behaviour of Mn in Al alloys. Many works had been already carried out on the diffusion of Mn in aluminum<sup>1),2),3),4)</sup> when the present work was started. However the results greatly differed

among them. In the present work, firstly the impurity diffusion coefficients were measured in the temperature range between 843 and 927 K using the serial sectioning method. Recently, metal artificial multilayered films and the interdiffusion in them has attracted many workers<sup>5)</sup> because of the appearance of the new interesting phenomena and properties and the production of nonequilibrium phases (amorphous phases, quasicrystalline and metastable crystalline) using the interdiffusion. Moreover, the interdiffusion in metal multilayered films is known to be very useful in determining of low interdiffusivities as low as  $10^{-26}\text{m}^2\text{s}^{-1}$  which can not be measured using the conventional method. However, very few work has been carried out on the interdiffusion in aluminum multilayered films. The second aim in the present work is to analyze the data<sup>6)</sup> on the time dependence of the integrated intensity of the X-ray reflection resulting from the superlattice modulation in the Al/Mn multilayered films during diffusin annealing and to determine the effective interdiffusivities in low temperature range. The results were compared with the high temperature data for Mn diffusion in aluminum.

## §2. Experimental prodedures

### 2.1 Production of carrier-free $^{54}\text{Mn}$ and impurity-diffusion experiments

The detaild method has been described elsewhere<sup>7)</sup>. The high purity (99.99mass%) Fe was used as the target for the production of  $^{54}\text{Mn}$ . Bremsstrahlung irradiation was carried out by means of the 300 MeV linear electron accelerator (Linac) of Tohoku University. The Lianc was operated for the irradiation typically at an energy of 60 MeV for 36 ks. The pulse width of the electron beam was about 3 ms and the repetition rate was 300 pulse  $\text{s}^{-1}$ . The sample tube was placed horizontally on the axis of the electron beam in close contact with the back of a Pt converter, 2 mm in thickness cooled by running tape water. The beam intensity was kept constant throughout the irradiation by means of a feed-back loop involving a core monitor. The carrier-free  $^{54}\text{Mn}$  was prepared using the photonuclear reaction  $^{56}\text{Fe}(\gamma, \text{pn})^{54}\text{Mn}$ . The chemical separation procedures for the carrier-free  $^{54}\text{Mn}$  were done as follows. The irradiated Fe target was dissolved in a small volume of a mixture of concentrated hydrochloric and nitric acids and evaporated to dryness. The residue was dissolved in a small volume of concentrated hydrochloric acid

to convert it completely to the chlorid form. The residue was then redissolved in 3 ml of 11 N hydrochloric acid. The solution was passed through an anionexchange resin which had been preliminally equilibrated with 11 N hydrochloric acid. Under the above conditions the Mn ions were absorbed on the resin bed. The solution of 6 N hydrochloric acid was added to the top of the column, and the Mn activities were eluted. The radiochemical purity was ascertained using a Ge(Li) detector. Fig. 1 shows the  $\gamma$ -ray spectrum of the eluted solution, indicating that in addition to  $^{54}\text{Mn}$ ,  $^{52}\text{Mn}$  and  $^{51}\text{Cr}$  are produced by-product. The 99.999mass% Al rod was machined to prepare specimens in the form of column, 13 mm in diameter and 13 mm in height. The specimens were annealed at 873 K for about 3 monthes. The resultant specimens contained only two or three grains per their crosection where grain boundary diffusion is negligibly small. One face of each specimen was ground carefully with Si carbide paper. To remove the Al oxide layer and obtain mirror-like surface, the specimens were electropolished in a solution of ethyl alcohol and perchloric acid. The isotope  $^{54}\text{Mn}$  in the form of chloride

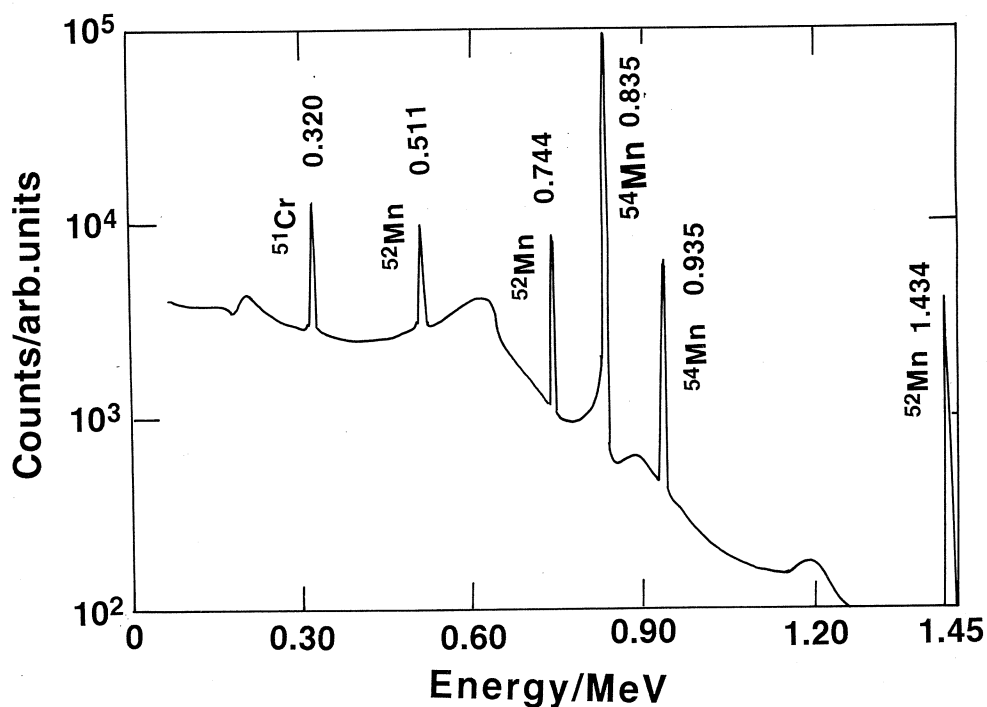


Fig. 1  $\gamma$ -ray spectrum of radioactive tracer prepared in the present work using bremsstrahlung irradiation and ionexchange separation method.

was dried on the flat surface of the specimens. The metallic tracer was produced by the reaction of the chloride with aluminum in the very early stage of diffusion annealing. Diffusion annealing was carried out in the temperature range between 843 and 927 K for sufficiently long time to minimize the influence of so-called "near-surface" effect in tracer diffusion and obtain many measurement points from one penetration curve. After the diffusion annealing, the cylindrical surface was reduced by a depth of about 1 mm using a precision lathe. The impurity-diffusion coefficients were determined by the serial sectioning method using a precision microtome. The thickness of the layer removed was measured by the so-called weight-loss method using a microbalance.

### 2.2 Preparation of Al/Mn multilayered films and diffusion annealing

The detail of experimental methods has been described in elsewhere.<sup>6),8)</sup> The Al/Mn multilayered films were prepared on a glass plate at room temperature in an ultra high vacuum of  $10^{-9}$  torr using molecular-beam epitaxy method. They consist of a 5 nm thick layer of Al alternated with a 0.8 nm thick layer of Mn for 80 periods and the chemical composition correspond to  $Al_{82}Mn_{18}$ . According to X-ray analysis of the initial state, Mn atoms form the fcc lattice in the (111) direction of an Al surface. The specimens were diffusion annealed in the temperature range between 473 and 773 K in high vacuum using the heating method with an infrared ray. The X-ray diffraction profiles in the Bragg reflection and small angle scattering region were measured in situ during diffusion annealing using a position-sensitive proportional counter.

## § 3. Results and discussion

### 3.1 Impurity-diffusion of Mn in aluminum

The solution of Fick's second law for the thin-film initial condition is

$$c = \text{const.} \exp(-X_n^2/4D^T \cdot t) \quad (1)$$

where  $c$  is the specific activity of a section, the center of which is  $X_n$  from the original surface,  $D^T$  the tracer diffusivity and the diffusion time. According to equation (1), the penetration plot of  $\log c$  vs.  $X_n^2$  should be linear. Fig. 2 shows the penetration plots of  $\log c$  vs.  $X_n^2$  for the diffusion of  $^{54}\text{Mn}$  in aluminum in the temperature range 873 and 927 K. Within the experimental errors, a good linear relationship is obtained. The

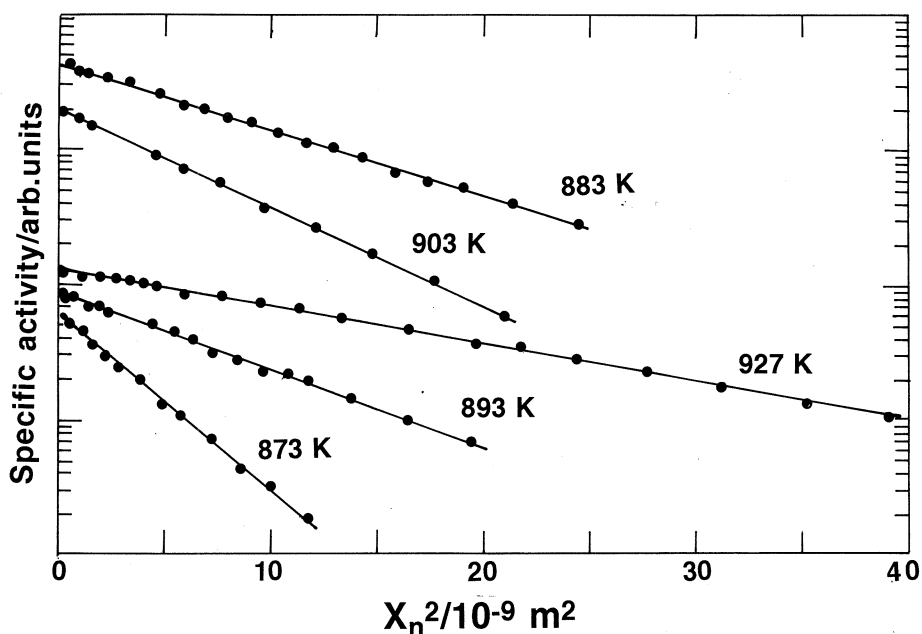


Fig. 2 Typical penetration profiles for diffusion of  $^{54}\text{Mn}$  in aluminum.

near-surface region with steep slope on the penetration curve is nearly absent in the present temperature range. The diffusivities determined in such a way are listed in Table 1. The diffusivities of the specimens diffused for different times at 873 K are nearly equal each other, indicating that thermal equilibrium condition for diffusion annealing is satisfied. Fig. 3 shows the temperature dependence of the impurity diffusivities of  $^{54}\text{Mn}$  ( $D_{\text{Mn}/\text{Al}}$ ) in the present work, in comparison with those of the recent works by other workers<sup>1),9),10)</sup>. Through the temperature range of the present work, the temperature dependence of the diffusivities could be indicated by a single straight line and is given by as follows :

$$D_{\text{Mn}/\text{Al}} = (3.17_{-1.08}^{+1.41}) \times 10^{-2} \exp \left( (-217 \pm 3) \text{kJ mol}^{-1} / RT \right) \text{m}^2 \text{s}^{-1} \quad (2)$$

Table 2 summarizes the values of the pre-exponential factor ( $D_0$ ) and the activation energy ( $Q$ ) for the diffusion of Mn in aluminum obtained in the present work, along with those of recent other works<sup>1),9),10)</sup>. As shown in Fig. 2, there is the order-of-magnitude agreement between our values and Hood<sup>1)</sup>, Beke<sup>9)</sup> and Minnamino<sup>10)</sup>, but slight differences are observed among them. Here, we discuss briefly the cause of the

Table 1 Impurity diffusivity of  $^{54}\text{Mn}$  in aluminum.

| $T(K)$ | Time(Ms) | $D^T(m^2s^{-1})$       | $2(D^T t)^{1/2}(\mu m)$ |
|--------|----------|------------------------|-------------------------|
| 927    | 0.227    | $1.74 \times 10^{-14}$ | 126                     |
| 927    | 0.227    | $1.69 \times 10^{-14}$ | 24                      |
| 913    | 0.660    | $1.11 \times 10^{-14}$ | 171                     |
| 903    | 0.159    | $8.47 \times 10^{-15}$ | 73                      |
| 903    | 0.159    | $9.37 \times 10^{-15}$ | 77                      |
| 893    | 0.312    | $6.04 \times 10^{-15}$ | 87                      |
| 893    | 0.312    | $6.01 \times 10^{-15}$ | 87                      |
| 883    | 0.495    | $4.64 \times 10^{-15}$ | 95                      |
| 883    | 0.495    | $4.48 \times 10^{-15}$ | 94                      |
| 873    | 0.228    | $3.61 \times 10^{-15}$ | 57                      |
| 873    | 0.872    | $3.18 \times 10^{-15}$ | 105                     |
| 863    | 1.18     | $2.16 \times 10^{-15}$ | 101                     |
| 853    | 1.09     | $1.54 \times 10^{-15}$ | 82                      |
| 843    | 0.667    | $1.12 \times 10^{-15}$ | 55                      |
| 843    | 0.667    | $9.46 \times 10^{-16}$ | 50                      |

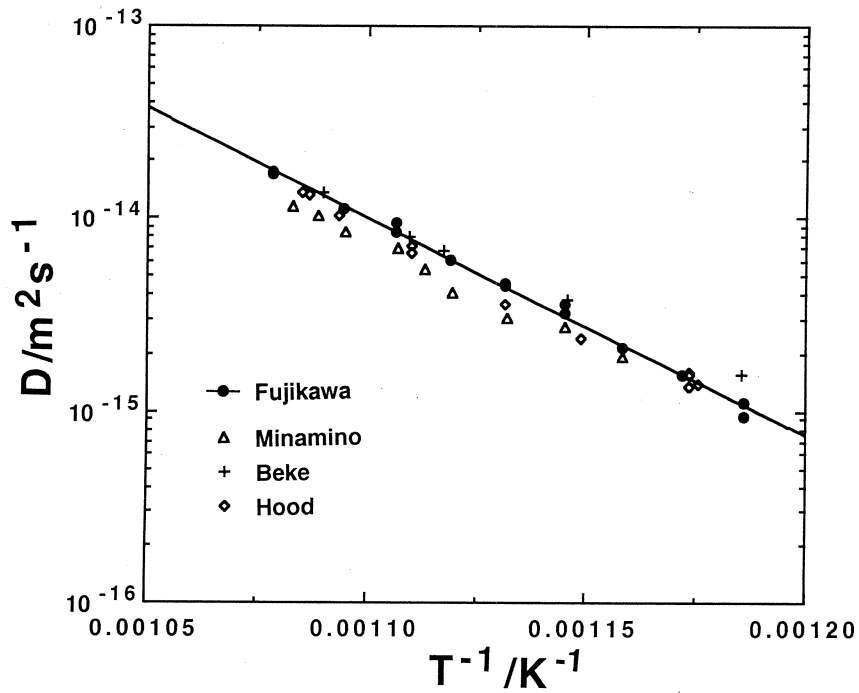
Fig. 3 Temperature dependence of impurity-diffusion coefficients of  $^{54}\text{Mn}$  in aluminum in high temperature range, along with other works.

Table. 2 Diffusion parameters for Mn in aluminum.

| Nuclide   | Method                           | $D_0(m^2s^{-1})$          | $Q(kJ mol^{-1})$ | $T(K)$  | Worker       |
|-----------|----------------------------------|---------------------------|------------------|---------|--------------|
| $^{54}Mn$ | chloride deposition<br>microtome | $3.17 \times 10^{-2}$     | 217              | 843–927 | Present work |
| $^{55}Mn$ | ion implantation                 | $1.04 \times 10^{-2}$     | 211              | 730–921 | Hood         |
| $^{56}Mn$ | activation analysis<br>microtome | $(9.02 \times 10^{-3})^*$ | $(208)^*$        |         |              |
|           | interdiffusion<br>EPMA           | $3.7 \times 10^{-3}$      | 203              | 863–923 | Minamino     |
| $^{54}Mn$ | electrodeposition<br>microtome   | $8.1 \times 10^{-4}$      | 189              | 843–917 | Beke         |

\* These values were recalculated in the present work.

difference. Our values of  $D_{Mn/Al}$  is somewhat larger than Hood's values. The diffusion time in their work is shorter than that in the present work and the mean diffusion distance, namely  $2(Dt)^{1/2}$  ranges from 8 to  $23 \mu m$ . It is generally difficult to determine correctly diffusion coefficients from such a narrow diffusion distance by sectioning using a microtome. The diffusion time in the present work is sufficiently long and the value of  $2(D^Tt)^{1/2}$  ranges from 50 to  $171 \mu m$  as shown in Table. 1 and thereby, the better penetration curves were obtained and the near-surface effect was hardly observed. There is a possibility that Hood's results are slightly affected by the experimental error from the sectioning method and the near-surface effect in spite of ion-implantation of the tracer atoms.

As shown in Table. 2, the values of  $Q$  by other workers except Beke are in good agreement with our value. The values of  $D_{Mn/Al}$  by Beke differ from the values obtained in the present work by 10–40%. The cause of the difference can be explained by the effect of the near-surface layer (i.e. the role of an intermetallic phase or an oxide layer from which the dissolution of the tracer needs a large amount of energy.) Minamino has determined the value of  $D_{Mn/Al}$  using Hall method from the tail of the penetration curve for the interdiffusion couple of Al/dilute Al-Mn alloy. Their values are the mean value of the interdiffusivities in the concentration range between 0 and 0.25 at.% Mn and strictly speaking, are not equal to the real impurity diffusivities. Their values in



high temperature range are lower about 50% than our values. It must be noted that the theoretical interpretation of the relatively high difference of the activation energy of impurity and self-diffusion for 3d elements in aluminum is still an open question.

### 3.2 Interdiffusion in Al/Mn superlattice

Effective interdiffusivities can be determined from the rate of homogenization of compositionally modulated multilayer films. The amplitude of the composition modulation can be described with the linearized diffusion equation derived by Cahn<sup>11)</sup>. A composition modulation gives rise to satellites about the (000) reflection. The intensity of the first-order satellite is proportional to the square of the amplitude of the first Fourier component of the modulation. The effective interdiffusivities  $\tilde{D}_\Lambda$  is given by the relative decrease in the first-order satellite intensity  $I(t)$ :

$$\frac{d}{dt} \ln(I(t)/I(0)) = -\tilde{D}_\infty \left[ 1 + \frac{2\eta^2}{f''} Y_{(hkk)} + \left( \frac{2K\beta^2}{f''} \right) \beta^2 \right] \beta^2 = -\tilde{D}_\Lambda \beta^2 \quad (3)$$

where  $I(0)$  is the initial intensity,  $\tilde{D}_\infty$  is the bulk interdiffusivity,  $\eta^2 Y/f''$  is the strain term,  $2K\beta^2/f''$  is the gradient energy term, and  $\beta = 2\pi/\Lambda$  where  $\Lambda$  is the period of the superlattice. Fig. 4 shows the time dependence of the integrated intensity of the

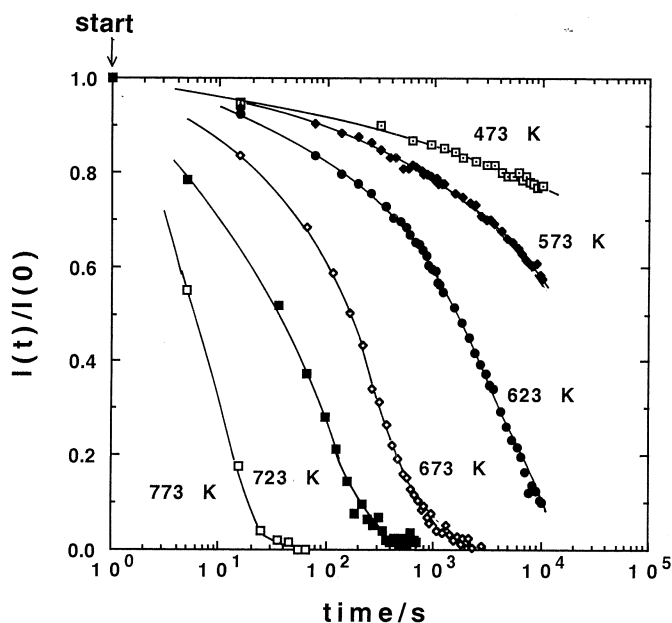


Fig. 4 Change with diffusion annealing of integrated intensity  $I(t)$  of first peak in small-angle region in Al/Mn multilayered films.

first peak of the small-angle region for each diffusion annealing temperature. As the temperature rises higher, the decay rate of  $I(t)/I(0)$  is greater. Fig. 5 shows the rewritten plots in  $\ln(I(t)/I(0))$  vs. time using the results for 473, 523 and 573 K. The time dependences for 523 and 573 K consist of two linear portions : short time portion ( I region) and longer time portion ( II region). The values of  $\tilde{D}_A$  were calculated from both the linear portions and shown in Table 3 Fig. 6 shows the similar plots for 673, 723 and 773 K shown in Fig. 4. The single linear portion ( II region) is clearly observed from the start of annealing for each diffusion temperature. The values of  $\tilde{D}_A$  were calculated from the linear portions using eq. (2) and shown in Table 3. It is necessary to calculate  $\tilde{D}_\infty$  from the data of  $\tilde{D}_A$  using eq. (3), but the strain and gradient terms are now unknown and thereby the calculation of  $\tilde{D}_\infty$  was not carried out in the present work. Usually, the value of  $\tilde{D}_\infty$  is smaller several ten % than that of  $\tilde{D}_A$ . Fig. 7 shows the Arrhenius plot of all values shown in Table 3. The straight line in Fig. 7 was calculated using the data for the region II at 773, 723, 673, 623 and 573 K. The temperature dependence is expressed as follows :

$$\tilde{D}_A = 2.04 \times 10^{-10} \exp(-145kJmol^{-1}/RT) m^2s^{-1} \quad (4)$$

The values of  $\tilde{D}_0$  and  $\tilde{Q}$  in eq.(4) are very smaller than those in eq.(2). The activation energy is in good agreement with that for the self-diffusion in aluminum<sup>(12),13)</sup>, indicating that the formation of Al<sub>6</sub>Mn may be rate-controlled by the diffusion of aluminum. The value at 473 K in Fig. 7 greatly deviates from the straight line. The result shows that the diffusion process at 473 K differs from that at higher temperature.

Fig. 8 shows an Arrhenius plot of  $\tilde{D}_A$  for Al/Mn multilayer film together with the high temperature diffusion data for Mn in aluminum. The straight line was obtained by extrapolating using all high temperature data shown in Fig. 3. It is very interesting that the values for Al/Mn multilayer films at all annealing temperature except 473 K are much lower several order of magnitude than the extrapolated straight line. On the other hand, the value of  $\tilde{D}_A$  at 473 K is somewhat larger than the extrapolated straight line. Considering the high density of grain boundaries and interfaces in the multilayered films, the two terms in eq. (3) and errors induced by extrapolation of high temperature data of the different workers, it can be said that the value of  $\tilde{D}_A$  at 473 K is rather equal to

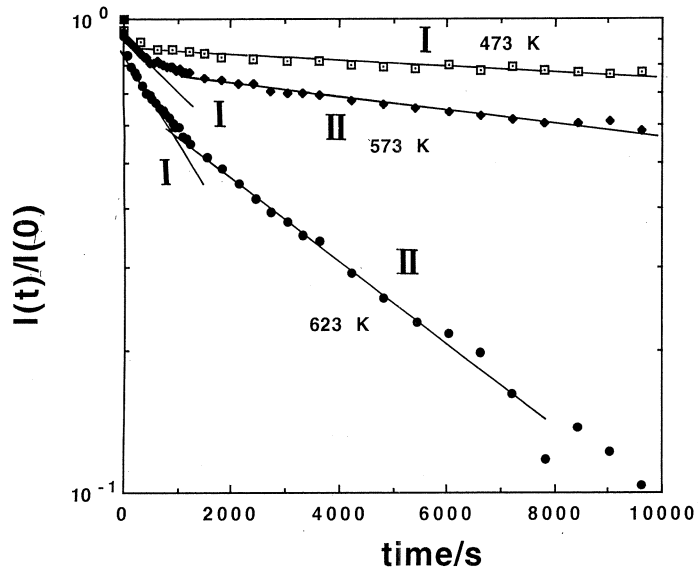


Fig. 5  $\text{Log}(I(t)/I(0))$  in Al/Mn multilayered films vs. annealing time plots at 473, 523 and 573 K.

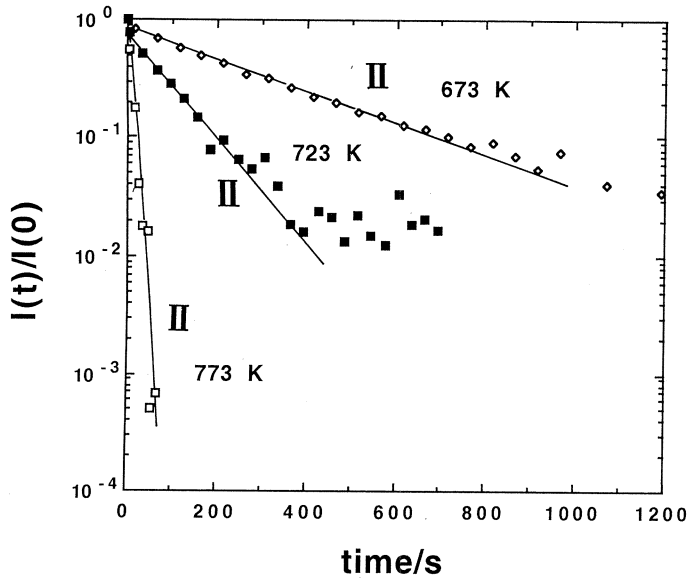


Fig. 6  $\text{Log}(I(t)/I(0))$  in Al/Mn multilayered films vs. annealing time plots at 673, 723 and 773 K.

Table 3 Effective interdiffusivities in Al/Mn multilayered films, obtained from linear least-square fits on data shown in Fig. 5 and Fig. 6.

| $T(K)$ | Region | Total annealing time (s) | $\tilde{D}_A (m^2s^{-1})$ | $2(\tilde{D}_A t)^{1/2} (nm)$ |
|--------|--------|--------------------------|---------------------------|-------------------------------|
| 773    | II     | $6.5 \times 10$          | $4.97 \times 10^{-20}$    | 3.59                          |
| 723    | II     | $3.95 \times 10^2$       | $3.93 \times 10^{-21}$    | 2.49                          |
| 673    | II     | $9.15 \times 10^2$       | $1.23 \times 10^{-21}$    | 2.12                          |
| 623    | I      | $4.15 \times 10^2$       | $2.05 \times 10^{-22}$    | 0.58                          |
|        | II     | $5.43 \times 10^3$       | $9.42 \times 10^{-23}$    | 1.43                          |
| 573    | I      | $4.95 \times 10^2$       | $1.18 \times 10^{-22}$    | 0.48                          |
|        | II     | $7.22 \times 10^3$       | $1.82 \times 10^{-23}$    | 0.73                          |
| 473    | I      | $9.62 \times 10^3$       | $3.90 \times 10^{-24}$    | 0.39                          |

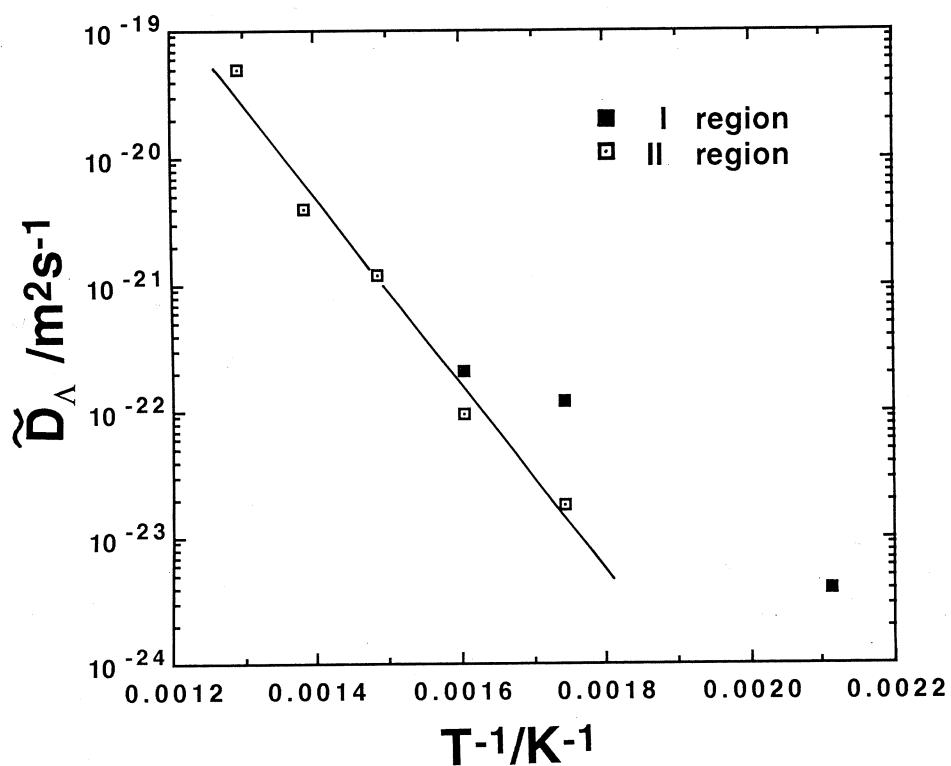


Fig. 7 Arrhenius plot of effective interdiffusivities in Al/Mn multilayered films. The straight line is obtained using only the data in the II region.

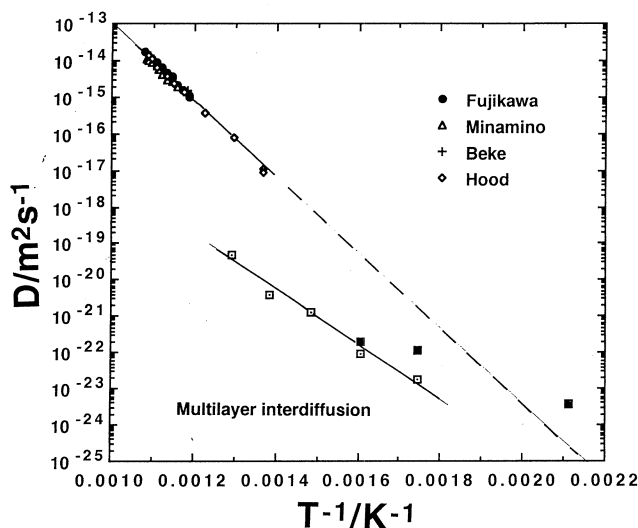


Fig. 8 Arrhenius plot comparing effective interdiffusivities in Al/Mn multilayered films with extrapolated tracer diffusion data of Mn in aluminum.

the extrapolated straight line. Here, we discuss change of the phase and structure during the diffusion annealing in the present work and the dependence of the annealing temperature. According to the results<sup>(6,8)</sup> of X-ray reflection in high angle region for the Al/Mn multilayered films, the intensity of the satellite peak around the Al(111) and Mn(111) reflection which is sensitive to the goodness of crystalline and lattice coherency, hardly changed after annealing at 473 K for sufficiently long time, and no broad peak (222) corresponding to the intermetallic compound  $\text{Al}_6\text{Mn}$  was not observed. Thus, in the case of the annealing at 473 K the initial structure and the phase composition did not fundamentally change and merely the initial rectangular wave of composition modulation slightly diffused owing to the diffusion of a small amount of Mn in aluminum. Consequently, the value of  $\tilde{D}_A$  at 473 K corresponds nearly to the interdiffusivity in dilute Al-Mn alloy. Such a very low interdiffusivity in Al-rich solid solution was determined for the first time in the present work. After annealing at higher temperatures than 573 K, the initial Al(111) and Mn(111) reflections and the satellites around them shifted towards higher angle and their intensity decreased, and in the later stage the reflections and the satellites disappeared and instead a broad peak (222)

corresponding to  $\text{Al}_6\text{Mn}$  appears. The results indicate the larger change in the phase composition and the structure, compared with the annealing at 473 K, and are explained by the formation of Al-Mn solid solution with high Mn content and the intermetallic compound  $\text{Al}_6\text{Mn}$  and then the values of  $\widetilde{D}_A$  at 673, 723 and 773 K correspond to the interdiffusivities for the reactive diffusion accompanying the formation of the  $\text{Al}_6\text{Mn}$ . On the other hand, in the case of the annealing at 573 and 623 K, the values of  $\widetilde{D}_A$  in the region I probably correspond to the interdiffusivities in Al-Mn solid solution affected greatly by the reactive diffusion and the values of  $\widetilde{D}_A$  in the region II correspond to the reactive diffusion accompanying only the formation of  $\text{Al}_6\text{Mn}$ . Strictly speaking, it is not adequate to determine the diffusivities using eq. (3) when the intermetallic compound appears. Then, it is necessary to investigate the diffusion in multilayer using the Tu-Berry method<sup>14)</sup> for the diffusion in multilayer accompanying the formation of intermetallic compound.

#### § 4. Conclusions

- 1) Carrier-free  $^{54}\text{Mn}$  was prepared using the photonuclear reaction  $^{56}\text{Fe}(\gamma, pn)^{54}\text{Mn}$  and the impurity-diffusion coefficients of  $^{54}\text{Mn}$  in coarsegrained aluminum polycrystals were determined in the high temperature range. In the future, it is necessary to investigate the impurity-diffusion over a wider temperature range. Since two radioisotopes  $^{52}\text{Mn}$  and  $^{54}\text{Mn}$  are simultaneously produced in the present method, it is very interesting to make the isotope effect experiment for the impurity-diffusion of Mn in aluminum and investigate the diffusion mechanism.
- 2) Effective interdiffusivities in Al/Mn superlattice  $(\text{Al}(5\text{nm})/\text{Mn}(0.8\text{nm}))_{80}$  were determined from the data of X-ray reflection in small angle region. The temperature dependence was discussed in the view of the diffusion process, compared with the diffusion data of Mn in aluminum at high temperatures.

#### Acknowledgements

One of authors (S.-I. F.) is very grateful to Dr. K. Masumoto for useful suggestions on the radioisotope production.

This work was supported by Light Metal Educational Foundation Inc. and Grant in Aid (No. 62850118) from the Ministry of Education, Science and Culture.

### References

- 1) G. M. Hood and R. J. Schultz : *Phil. Mag.* **23** (1971) 1479.
- 2) D. Berner and E. Cyrener : *Neue Hutte* **18** (1973) 9.
- 3) T. S. Lundy and J. F. Murdock : *J. Appl. Phys.* **33** (1962) 1671.
- 4) W. G. Fricke : *Scripta Met.* **6** (1972) 1139.
- 5) for example, S.-I. Fujikawa, *Japan Inst. Light Metals* **41** (1991) 55.
- 6) Y. Nishihata, M. Nakayama, N. Sano and H. Terauchi : *J. Phys. Condens. Matter* **1** (1989) 7303.
- 7) S.-I. Fujikawa and K. Hirano : *Met. Sci. Forum* **13 & 14** (1987) 539.
- 8) Y. Nishihata, M. Nakayama, M. Sano and H. Terauchi : *J. Appl. Phys.* **63** (1988) 319.
- 9) D. L. Beke, I. Godeny, I. Moricz and F. J. Kedves : *Phil. Mag. Lett.* **60** (1989) 219.
- 10) Y. Minamino, Y. Yamane, S. Nakayama, H. Araki and K. Kirao : *Japan Inst. Light Metals* **37** (1987) 72.
- 11) J. W. Cahn : *Acta Met.* **9** (1961) 795.
- 12) T. S. Lundy and J. F. Murdock : *J. Appl. Phys.* **33** (1962) 1671.
- 13) M. Beyeler and Y. Adda : *J. Phys. (Paris)* **29** (1968) 345.
- 14) K. N. Tu and B. S. Berry : *J. Appl. Phys.* **43** (1972) 3283.

### Ⅲ. 加 速 器 ・ 測 定 装 置



# 150MeVパルスビーム・ストレッチャーへのRF系の導入 (I)

## — RF系パラメータの選択と空洞設計 —

核理研

加藤龍好・菅原真澄・小山田正幸

玉江忠明・浦澤茂一・今野 収

中里俊晴・庭野 智・江口 剛

### §1. はじめに

東北大核理研ではこれまで、SSTR<sup>1)</sup>を用いてストレッチャー・リングの諸特性の研究を続けるとともに、次期計画の大型パルスビーム・ストレッチャーに必要とされるRF系の研究<sup>2),3)</sup>を行ってきた。これまでの研究で我々は、クライストロン等、RF源の出力変調をせずに、RF系パラメータの選び方だけで負荷変動を抑える方法を見いだした。現在これらの研究の次のステップとして、SSTRリングにRF系を導入し、実際に加速試験を行なうための準備を進めている。<sup>4)</sup>ここではRF系導入に伴うSSTRのリング・パラメータの変更とRF系パラメータの最適化、および加速空洞の設計について報告する。

### §2. RF系パラメータ

#### 2.1 リング・パラメータの変更

現在のSSTRはRF加速を前提とせずに設計されている。ゆえにRF系の導入にはリング・パラメータの変更が必要となる。SSTRの周長は15.484m、RF周波数2856MHzの波長の整数倍とほぼ半波長の差がある。そのため中心軌道を外側に8mmずらすことにより、周長を波長の整数倍とする。これに伴いベータトロン振動数等も変更を受ける(第1表)。

第1表 変更後のリング・パラメータ。

|            |         |          |
|------------|---------|----------|
| 周長         |         | 15.535 m |
| 自由空間長      |         | 1.329 m  |
| 曲率半径       |         | 0.780 m  |
| エネルギー      |         | 150 MeV  |
| ベータトロン振動数  | $\nu_x$ | 1.305    |
|            | $\nu_y$ | 1.226    |
| ディラレーション係数 |         | 0.65     |
| RF加速周波数    |         | 2856 MHz |
| ハーモニック数    |         | 148      |

## 2.2 RF系パラメータ

SSTR内の蓄積電流は取り出し電流が  $1 \mu\text{A}$  のとき、ビーム入射時の  $1.1 \mu\text{sec}$  の間に  $0 \text{mA}$  から  $100 \text{mA}$  まで増加し、次のパルスビーム入射までの  $3.3 \text{msec}$  の間に  $0 \text{mA}$  まで減少する。このような負荷変動に対して空洞内の加速電圧や位相の変動が充分小さいことがストレッチャー用RF系の性能として要求される。これを解決するために以下に述べる2つの方法を考えた。

1) 加速空洞のシャント・インピーダンス  $R_a$  を小さく、RF入力結合器の結合定数  $\beta$  を大きくとる。これによりRF源により励振される電圧  $V_g$  に対する蓄積ビームの励振する電圧  $V_b$  の比が小さくなる。

2) 空洞内に励振される正味の加速電圧  $V_c$  の大きさが  $V_g$  のそれに等しくなるよう他のパラメータを選択する。このとき蓄積電流の変化に対し、空洞内電圧  $V_c$  の変化が最小になる。

これにより、位相空間でのセパトリクス  
の安定領域の大きさはほぼ一定となるが、  
負荷変動に伴い、シンクロトン位相角  $\phi$   
の変化  $\Delta\phi$  だけ、セパトリクス全体が平  
行移動する。(第1図)。

これらふたつの方法を組み合わせることにより加速電圧の変動を零に近づけることができる。このことはかつて文献5)に報告しているので詳細は省くが、簡単にまとめると次のようになる。

第1図で用いられている量はそれぞれ下記のように現わすことができる。

$$V_{gr} = \frac{2\sqrt{\beta}}{1+\beta} \sqrt{R_a P_g} \quad (2.1)$$

$$V_{br} = \frac{1}{1+\beta} I_0 R_a \quad (2.2)$$

$$V_g = V_{gr} \cos \psi \quad (2.3)$$

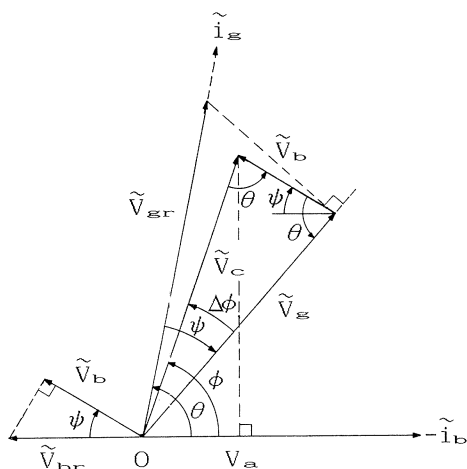
$$V_b = V_{br} \cos \psi \quad (2.4)$$

ここで、

$R_a$  : 加速空洞のシャント・インピーダンス

$P_g$  : 加速空洞に入力される電力

$I_0$  : ビーム電流



第1図  $V_c = V_g$  の条件を課した場合のフェイザー図表。

$V_{gr}$  : 空洞に入力されるRFによって励振される電圧

$V_{br}$  : 空洞を通過するビームによって励振される電圧

$V_c$  : 空洞内の正味の加速電圧

$V_a$  : 実際の電圧利得

$\psi$  : チューニング角

$\phi$  : シンクロトン位相角

$\theta$  : ビームの通過する位相と入力RFとの位相差

( $V_{gr}$ ,  $V_{br}$ のrは on resonance の意味)。

$\beta$  : RF入力結合器の結合係数

$\phi$  : チューニング角

である。ここで  $V_c = V_g$  と (2. 1) ~ (2. 4) を用いると、シンクロトロン位相角  $\phi$  の変化  $\Delta \phi$  は、

$$\Delta \phi = 2 \sin^{-1} \left\{ \frac{I_0 \sqrt{R_a}}{4 \sqrt{\beta P_g}} \right\} \quad (2. 5)$$

となる。この  $\Delta \phi$  を結合係数  $\beta$  と加速空洞への入力電力  $P_g$  の関数として示したものが第 2 図である。

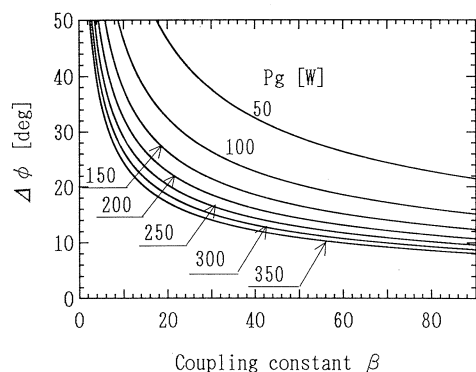
第 1 図よりチューニング角  $\phi$  は、超過電圧比  $q$  を用いて、

$$\phi = \cos^{-1} \left( \frac{1}{q} \right) \cos^{-1} \left\{ \frac{I_0 \sqrt{R_a}}{4 \sqrt{\beta P_g}} \right\} - \pi \quad (2. 6)$$

となる。他方、 $V_c = V_g$  の条件に  $V_c = qV_a$  を用いると、

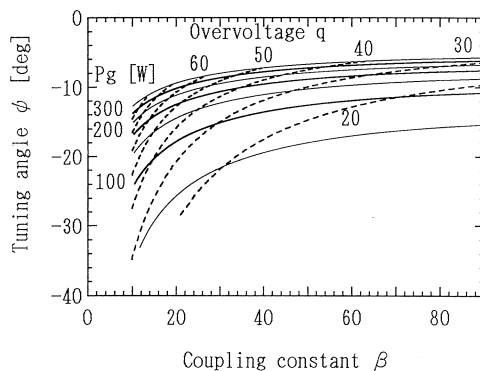
$$\phi = - \cos^{-1} \left\{ \frac{(1 + \beta) q V_a}{2 \sqrt{\beta R_a P_g}} \right\} \quad (2. 7)$$

を得る。ここで、 $V_a$  はリング 1 周当たりの電圧利得である。この 2 式を同時に満たす  $\phi$  が選択可能なチューニング角  $\phi$  となる。この条件のもとでは、加速空洞のシャント・インピーダンス  $R_a$ 、RF入力結合器の結合係数  $\beta$ 、加速空洞への入力電力  $P_g$ 、超過電圧比  $q$ 、チューニング角  $\phi$  のうち独立な変数は 4 個だけである。(第 3 図)



第 2 図  $V_c = V_g$  の条件下でのシンクロトロン位相角  $\phi$  の変化  $\Delta \phi$ 。

$\phi$  (縦軸, 単位は deg.) を RF 入力結合器の結合係数  $\beta$  (横軸) と加速空洞への入力電力  $P_g$  (単位は kW) の関数として示してある。シャント・インピーダンス  $R_a$  は  $0.25 \text{ M}\Omega$ 。蓄積電流の変化は  $100 \text{ mA}$ 。



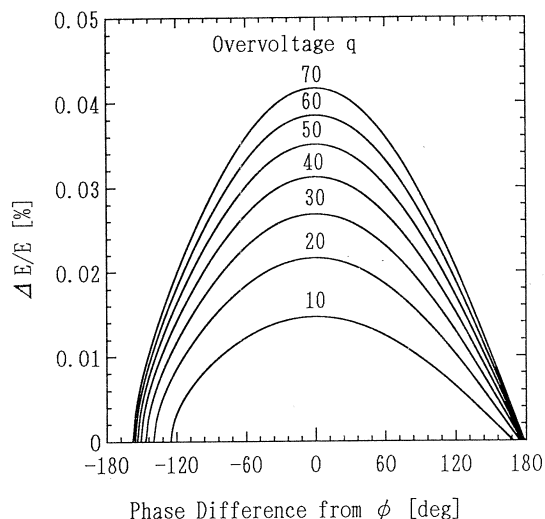
第 3 図  $V_c = V_g$  の条件下でのチューニング角  $\phi$ 。

ここでは  $\beta$  を横軸にとり、 $q$  と  $P_g$  (単位は kW) を固定したときのチューニング角  $\phi$  (単位は deg.) を縦軸に示してある。シャント・インピーダンス  $R_a$  は  $0.25 \text{ M}\Omega$ 、蓄積ビーム電流は  $100 \text{ mA}$  であり、電圧利得  $V_a$  が SSTR リングでの 1 周当たりの放射光損失  $57.4 \text{ eV}$  (入射電子のエネルギーが  $150 \text{ MeV}$  のとき) に等しいとした。

また第4図は超過電圧比  $q$  と RF セパトリティクスとの関係を示す。SSTR リングのディラレーション係数が非常に大きいため、位相安定領域のエネルギー・アクセプタンスが小さい。加速周波数は2856MHz、入射ビームのエネルギーは150MeVである。

$q$  に対してエネルギー・アクセプタンスが小さいのは SSTR リングのディラレーション係数が非常に大きいことによる ( $\alpha=0.65$ )。

以上のことを考慮して、最適と考えられるパラメータを第2表に示す。



第4図 超過電圧比  $q$  を変えたときのセパトリティクス。

### §3. 加速空洞

#### 3.1 加速空洞の設計

SSTR 用加速空洞の特色はビーム口径が非常に大きいことである。(φ70mm) これは現在の SSTR が入射・取り出しの際に水平方向にビームの軌道を大きく変化させることと、リング内でのビームサイズが大きいことによる。設計はまず計算機コード URMEL-T を用いて周波数2856MHz、ビーム口径φ70mm の条件のもとに実効シャント・インピーダンスの小さな形状を求めた。この空洞の計算結果を第3表に、高次モード

第2表 RF系パラメータ。

|               |          |
|---------------|----------|
| RF 加速周波数      | 2856 MHz |
| ビーム電流         | 100 mA   |
| シャント・インピーダンス  | 0.25 MΩ  |
| 超過電圧比         | 50       |
| 加速電圧          | 2.87 kV  |
| シンクロトロン位相     | 88.9°    |
| シンクロトロン振動周波数  | 0.33 MHz |
| クライストロン最大出力   | 500 W    |
| 空洞損失電力        | 32.9 W   |
| 放射光損失         | 57.4 eV  |
| 空洞数           | 1 台      |
| RF 入力結合器の結合係数 | 27.5     |
| 空洞への入力電力      | 250 W    |
| チューニング角       | -10°     |
| 位相変動          | 17°      |

の一覧を第4表にまとめておく。  
次にこの形状の空洞を試作し、  
RF 入力結合器・チューナー等の  
取り付け穴の周波数に与える影響  
を測定した。この測定結果をもと  
に再び計算機コードを用いて設計  
しなおした。この空洞の形状を第  
5図に示す。

第3表 空洞性能 (URMEL-T による計算結果)。

|               |            |
|---------------|------------|
| 共振周波数         | 2856.2 MHz |
| シャント・インピーダンス* | 0.33 MΩ    |
| $R/Q^*$       | 12.0 Ω     |
| $Q_0^{*,**}$  | 27900      |
| 通過時間因子        | 0.106      |

※) 試作空洞の結果から製作後の値  
はこの75%を仮定している。

※※) 空洞の材質は無酸素銅を仮定

第4表 SSTR 用加速空洞高次モード。

| MODE<br>TYPE      | FREQUENCY<br>(MHz) | $(R/Q)$<br>(OHM AT $R_0$ ) | $(R/Q)/(k * R_0)^2$<br>2 (OHM) | ACCURACY | CONTAMINATION |
|-------------------|--------------------|----------------------------|--------------------------------|----------|---------------|
| MONOPOLE MODE     |                    | $R_0 = 0 \text{ mm}$       |                                |          |               |
| TM <sub>010</sub> | 2856.21            | 11.958                     | —                              | 1.1E-03  | 0.036636      |
| CUTOFF            | 3278.36            |                            |                                |          |               |
| DIPOLE MODES      |                    | $R_0 = 35 \text{ mm}$      |                                |          |               |
| HEM1+             | 1617.46            | 354.708                    | 251.470                        | 4.3E-03  | 0.051023      |
| HEM1-             | 2327.02            | 92.124                     | 31.616                         | 3.3E-03  | 0.177183      |
| TE <sub>111</sub> | 2401.15            | 3.866                      | 1.246                          | 4.4E-02  | 2.013496      |
| CUTOFF            | 2510.00            |                            |                                |          |               |

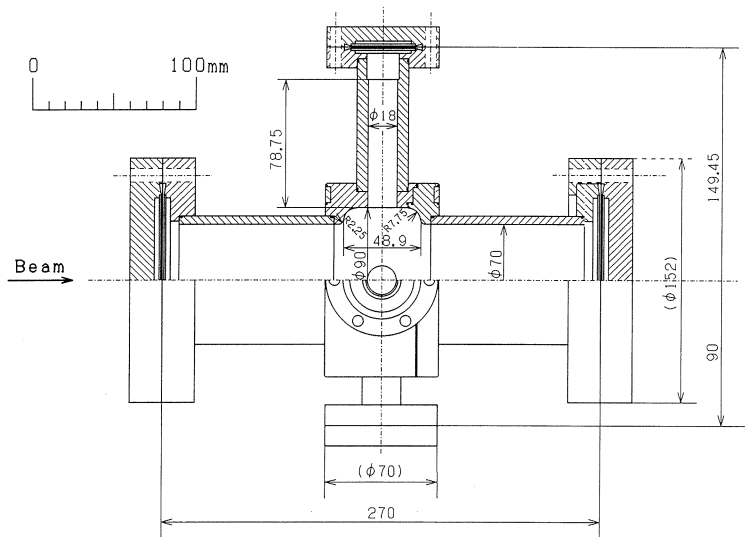
### 3.2 空洞性能の測定

実際に製作した空洞の測定結果との比較を第5表に示す。空洞のQ値は URMEL-T の計算値の75%の予定に対し計算値の78%を、チューナーによる周波数可変範囲は14.5MHz に対し14.6MHz と非常によい一致を示すが、空洞の共振周波数は空気による影響を1MHz としてもなお2.5MHz 程度のずれがある。

### 3.3 今後の開発要素

製作された空洞は CW で250~500W 程度のパワーを入力されることになる。そのためハイ・パワーの RF 入力結合器を開発しなければならない。またSバンドの空洞内に冷却まで考慮

したループ型の RF 入力結合器を取り付けることは空洞の共振周波数を著しく変化させると考えられる。そこでまだ見込むことのできないこの影響を取り除くために、チューナーの反対側に固定型のチューナーを取り付けることを検討している。(第6図) RF 入力結合器と固定型チューナーをペアで開発することにより、制御帰還系と連動した可動型チューナーは RF 入力結合器によらず最大周波数可変範囲を取り得る位置に置くことができる。(第5図に示した空洞形状はこのことを前提に設計されている。) 固定型チューナーは、現在開発段階にあるハイ・パワー用のループ型 RF 入力結合器が空洞の共振周波数に与える影響を打ち消すように、RF 入力結合器とペアで開発される。これにより従来の可動型チューナーは RF 入力結合器によらず最大周波数可変範囲を取り得る位置に置くことができる。また周波数可変範囲を多くとる必要のない場合は、可動型チューナーと固定型チューナーの突出量を同程度とすることにより、ビーム軸上の電磁場分布の歪を小さく抑えることもできる。



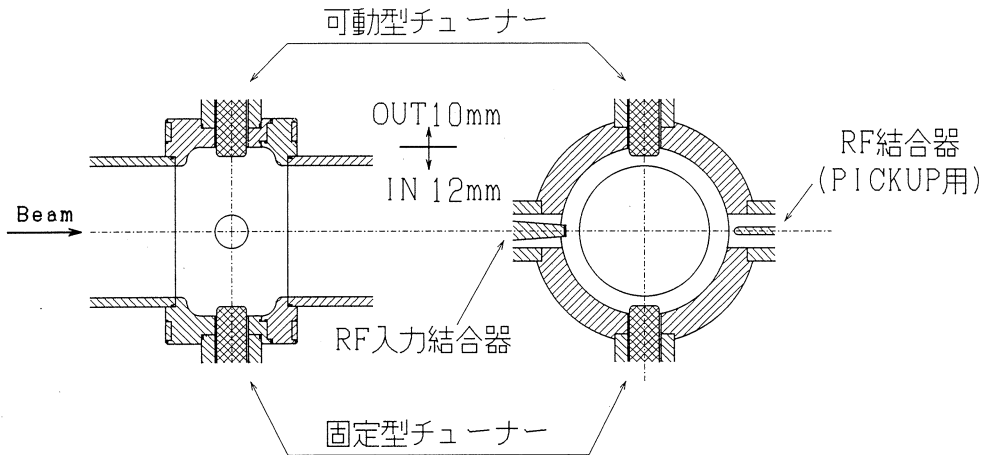
第5図 加速空洞の形状。

既に存在するリング SSTR に挿入するため、ビーム口径は小さくできない。ビーム口径は直径70mm、空洞部の最大内径は直径90mm、加速ギャップは48.9mmである。

第5表 SSTR 用加速空洞測定結果。

|   | 計 算 値  | 測 定 値                            |
|---|--|----------------------------------|
| 共振周波数<br>( $f_0$ [MHz])                     | 2851.244 (URMEL-Tの計算値 [真空中])<br>2838.592 (*) | 2835.106 [空気中]                   |
| Q値 ( $Q_0$ )                                | 27900 (COUPLER 穴なし)                          | 21700 (COUPLER 穴あり)<br>{計算値の78%} |
| TUNER による<br>周波数可変範囲<br>( $\delta f$ [MHz]) | 14.503                                       | 14.642                           |

\*) URMEL-T の計算値に RF 結合器・チューナー等の取り付け穴が周波数に与える影響を加味した推定値 [真空中]



第6図 可動型及び固定型チューナーによる周波数制御。

#### §4. 今後の課題

本研究で用いた負荷変動対策はクライストロンの出力変調をせずに、パラメータの選び方だけで実現できるという利点をもつ。このことを実験的に証明することが本研究の目的である。

しかし現在すでに存在するリングに RF 系を導入するため、RF 系を設計する上で多くの制約があり、次期計画の大型ストレッチャーの RF 系を設計する以上の困難を抱えている。そのひとつは、RF バケットのエネルギー・アクセプタンスが小さいという問題である。これはリングのディラレーション係数が非常に大きいことによる (第1表)。そのため超過電圧比を第2表のように大きくとる必要があるが、それでも  $\pm 0.035\%$  のアクセプタンスしかない。そ

る。SSTR は現在放射光損失を利用したモノクロマティック取り出しを行っているが、RF 加速を行った場合にはその方法が使えなくなる。そのためストレッチャー用 RF 系の動作試験時には他の方法を用いて蓄積電流を変化させてやる必要がある。

## 参 考 文 献

- 1) T. Tamae, M. Sugawara, K. Yoshida, O. Konno, T. Sasanuma, M. Muto, Y. Shibasaki, T. Tanaka, M. Hirooka, K. Yamada, T. Terasawa, S. Urasawa, T. Ichinohe, S. Takahashi, H. Miyase, Y. Kawazoe, S. Yamamoto and Y. Torizuka : Nucl. Instr. and Meth. A **264** (1988) 173.
- 2) R. Kato, M. Oyamada, S. Urasawa and T. Nakazato : *Proc. 14th Linear Accelerator Meeting in Japan* (1989) p. 62.
- 3) 加藤龍好 : 修士論文 東北大学, 1990.
- 4) R. Kato, M. Sugawara, M. Oyamada, T. Tamae, S. Urasawa, O. Konno, T. Nakazato, S. Niwano and T. Eguchi : *Proc. 15th Linear Accelerator Meeting in Japan* (1990) p. 56.
- 5) 加藤龍好, 小山田正幸, 浦澤茂一, 中里俊晴 : 核理研研究報告 **23** (1990) 121.
- 6) M. Sugawara, T. Ichinohe, S. Urasawa, M. Oyamada, T. Kubota, A. Kurihara, O. Konno, Y. Shibasaki, T. Terasawa, K. Nakahara, S. Nemoto, M. Muto, K. Shoda and Y. Torizuka : Nucl. Instr. and Meth. **153** (1978) 343.



## ビームチョッパを用いたバンチ短縮

核理研, 科研\*, 工学部応用物理\*\*

庭野 智・小山田正幸・浦澤茂一

中里俊晴・栗原 亮・高橋重伸

柴崎義信・加藤龍好・池沢幹彦\*

大坂俊明\*・柴田行男\*・伊師君弘\*

蔦谷 勉\*・高橋俊晴\*・三代秀昭\*

荒井史隆\*・近藤泰洋\*\*

### §1. はじめに

コヒーレント放射光は、従来知られていたインコヒーレントな放射光と較べ桁違いに強い強度が得られる。コヒーレント放射光の強度は、バンチ当たりの電子の個数の2乗に比例し、その光のスペクトルはバンチ長に強く依存し、古典電磁気学に基づく考察どおり、バンチが短いほど放射光スペクトルの短波長の成分が延びる<sup>1)</sup>。コヒーレント放射光の発生帯域を拡げるためには、バンチ長を短くしスペクトルを短波長領域にまで延ばす必要がある。また、コヒーレント放射光の基礎的な研究を進めるうえで、バンチ長が自由に変えられることは重要である。

バンチ長を変える方法としては、

- 1) バンチコンプレッサを用いてバンチを圧縮する
- 2) ビームチョッパを用いて電子ビームを切り出す

という2つの方法が上げられる。

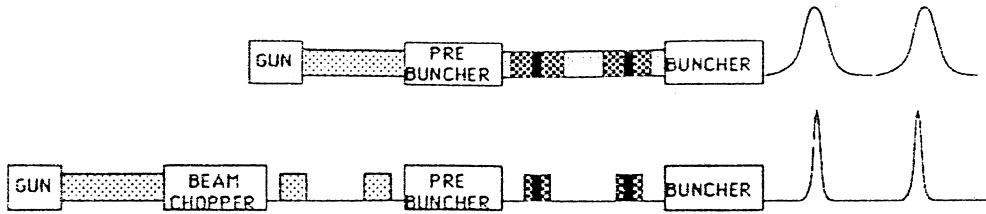
前回、エネルギー分析電磁石系をバンチコンプレッサとしてバンチ圧縮を試みたが期待された成果が得られなかった<sup>2)</sup>。

今回、ビームチョッパを製作し、その動作試験を行なったので報告する。

### §2. ビームチョッパの概要

ビームチョッパは、バンチまたは連続電子線の一部を時間的に切り出し短いパルスにする<sup>2)</sup>。ビームチョッパをライナック入射系近くの低エネルギー部に設置すればビームを切り出すために必要なパワーが比較的小さくてすむ。このため本研究では電子銃の後にビームチョッパを設置することにした。ビームチョッパを使ってプリバンチャー、バンチャーへの入射をパルスにすれば、これまでに較べて短いバンチが得られるはずである。この様子を第1図に示す。ビームチョッパで切り取るにより減少する分の電流は、電子銃のエミッションを高めることで

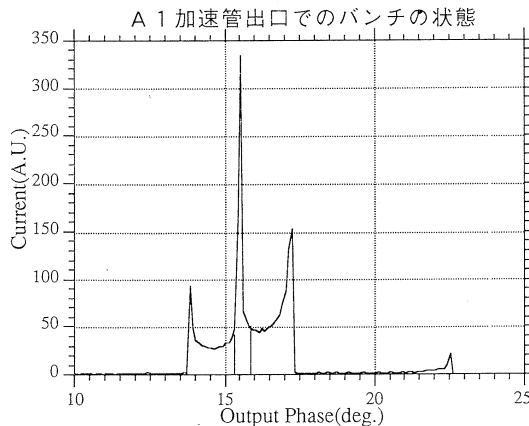
補償できる。



第1図 バンチングの様子。

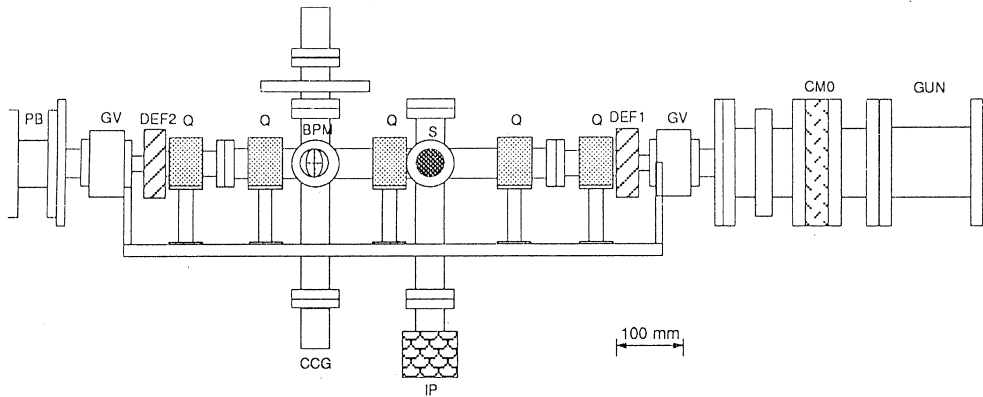
上は従来のバンチングシステム。連続電子線をプリバンチャーで密度変調をかけバンチャーでバンチする。下の様にビームチョッパを挿入すればパルスビームをバンチすることになるためこれまでに較べて短いバンチを作ることができる。

現在のライナックのパラメータを使って計算したところ最初の加速管 A1 出口におけるバンチの形状は第2図のようになることがわかった<sup>3)</sup>。ピーク部の幅0.5度には A1 から出るビームの22%がふくまれる。ビームチョッパのビームを切り取るタイミングをピーク部に相当する位相に合わせれば最も多くの電流が得られる。第3図にビームチョッパの構成を示した。ビームチョッパは5台の四極電磁石と2台のディフレクタ及びスリットによって構成されている。上流のディフレクタ (DEF1) で大きく振られたビームはスリットで切り取られる。スリットを通り抜けたビームは上流のディフレクタで振られた分を下流のディフレクタ (DEF2) で振り戻す。



第2図 最初の加速管 A1 出口でのバンチの状態。

A1 をでるビームは位相で  $\pm 2$  度の幅にバンチされる。これは、A1 の位相を振ったときに得られるスペクトラムである。ピーク部の幅0.5度には約22%のビームが含まれている。ビームチョッパでビームを切り取るタイミングをピーク部に相当する位相に合わせれば電流の損失が少ない。



第3図 ビームチョッパの構成図。

IP : イオンポンプ, CCG : コールドカソードゲージ, Q : 四極電磁石, DEF : ディフレクタ, BPM : ビームポジションモニタ, GV : ゲートバルブ, S : スリット, CM0 : コアモニタ, PB : プリバンチャー

### §3. 基本設計

以下にビームチョッパを構成する各機器について述べる。

#### 3.1 ディフレクタ

ディフレクタは矩形のRF空洞で、 $TM_{210}$ モードによりRF磁場を用いてビームの偏向を行なう。ディフレクタへ入力するRFは、パルスピーク3kWである。これは、バンチャ、プリバンチャに供給されているRFの一部を分割することで得られる。

空洞内部の電磁場分布を解析的に求めることが出来ることと、ビームの偏向に用いるモードとそれに垂直なモードとの分離が容易であることから、ディフレクタには矩形のRF空洞を採用した。以下のようにして $TM_{210}$ モード以外のモードを使用周波数(2856MHz)から分離した。

ビーム軸の方向をz軸、z軸に垂直な平面にx軸、y軸をとる。但し、ビームを振る方向はx軸である。x軸、y軸、z軸方向の長さをそれぞれa, b, cとすれば、矩形空洞の $TM_{210}$ モードの共振周波数は、

$$\omega_{210}^2 = \frac{\pi^2}{\epsilon_0 \mu_0} \left( \frac{4}{a^2} + \frac{1}{b^2} \right)$$

で与えられる。ここで、パラメータ $\theta$ を使って、

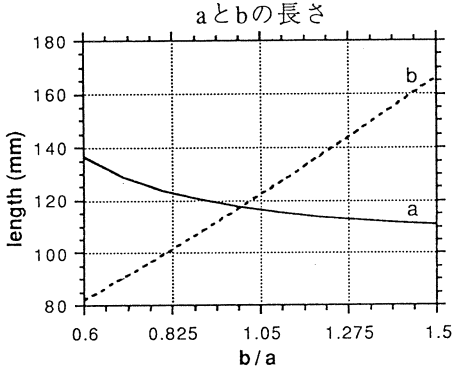
$$a = \frac{2\pi}{\sqrt{\epsilon_0 \mu_0} \omega_{210} \sin \theta}$$

$$b = \frac{\pi}{\sqrt{\epsilon_0 \mu_0} \omega_{210} \cos \theta}$$

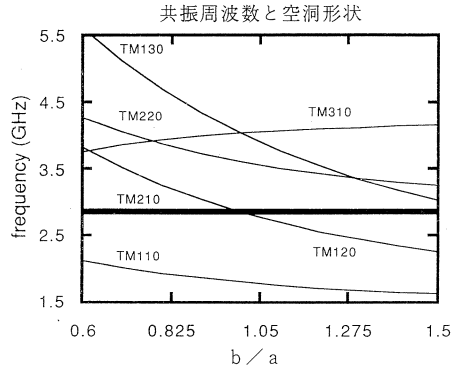
と置くことができる。このとき

$$\frac{b}{a} = \frac{1}{2} \tan \theta$$

である。第4図に $\omega_{210} = 2\pi \times 2.856 \times 10^9$ とおいた時の $a$ ,  $b$ の長さを $b/a$ をパラメータとして示す。第5図に各モードの共振周波数を $b/a$ をパラメータとして示す。



第4図 共振周波数を2856MHzに固定したときの $b$ と $a$ の長さ。



第5図  $b/a$ を変化させたときの各モードの共振周波数。

横軸は、 $TM_{210}$ モードの共振周波数を2856MHzにした時の $b/a$ である。他のモードを分離するために $b/a=0.6$ を選んだ。

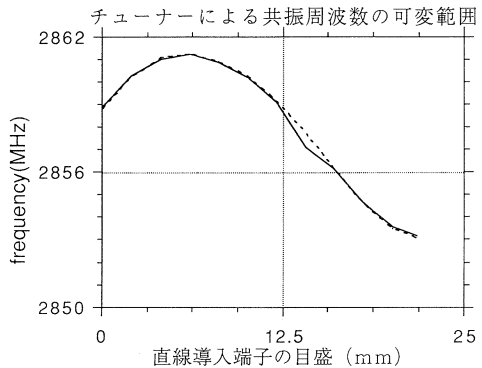
第5図から $b/a$ には0.6を選ぶことが妥当であると判断できる。このとき $a$ ,  $b$ はそれぞれ136.6mm, 82.0mmである。 $c$ は16.0mmにした。この時、 $TE_{101}$ ,  $TE_{011}$ ,  $TE_{111}$ モードの共振周波数は、9GHzより高い周波数になる。

ディフレクタは無酸素銅で製作した。室温 ( $T=23^\circ\text{C}$ ) 大気圧下で測定したチューナーによる共振周波数の変化を第6図に示す。測定の結果得られたディフレクタの性能を第1表に示す。

但し、 $a$ はディフレクタへの入力パワー $P_m$ と最大振り角 $\theta$ とを結ぶ比例定数であり、

$$\theta[\text{rad}] = a \sqrt{P_m[\text{W}]} \quad (3)$$

と表されるものである。



第6図 チューナーの可変範囲。

点線は上流側ディフレクタ (DEF1), 実線は下流側ディフレクタ (DEF2) の測定結果を示す。チューナーによる周波数可変範囲は両ディフレクタ共2854~2860MHzである。したがって、真空排気後の空洞形状の変化、温度上昇による共振周波数のずれはチューナーで調整することができる。

ディフレクタの冷却は、立体回路系冷却用の40°Cの純水を用いて行なった。

### 3.2 スリット

ディフレクタを通過する電子は磁場により横方向の力を受ける。横方向に大きく振られた電子はビームチョップ内の2枚のス

リットにより切り取られることになる。スリットは無酸素銅製でビーム軸に垂直に面積 $20 \times 35 \text{ mm}^2$ を持ち、直線導入端子により開閉される。ビームをスリットに照射したときのスリットの温度を算出する。ガンパルサーの運転条件がパルス幅 $3.8 \mu\text{s}$ 、最大繰り返し $300\text{pps}$ 、最大電流値 $200\text{mA}$ のとき、電子銃より得られるビームのエネルギーは $80\text{keV}$ であるので、出力は、

$$80\text{keV} \times 200\text{mA} \times 3.8 \times 10^{-6} \times 300 = 18\text{W}$$

となる。

スリットは2枚あるのでこの半分が1枚のスリットへ入るとすれば1つのスリットがビームから得る熱 $P_{\text{beam}}$ は $9\text{W}$ である。一方輻射による放熱 $P_{\text{rad}}$ は、

$$P_{\text{rad}} = \epsilon \sigma S_1 (T^4 - T_0^4)$$

ここで

- $\epsilon$  : emissivity $\sim 0.5$
- $\sigma$  : Stefan-Boltzman定数
- $S_1$  : スリット板の面積 (両面)
- $T_0$  : 周囲温度 $\sim 300\text{K}$
- $T$  : スリット板の温度

であり、熱伝導による放熱 $P_{\text{cond}}$ は、

$$P_{\text{cond}} = k S_2 (T - T_0) / l$$

ここで

- $k$  : 材料の熱伝導率
- $S_2$  : 直線導入端子のロッドの断面積
- $l$  : 直線導入端子のロッドの長さ

である。今回製作したスリットの形状では、

$$P_{\text{rad}} = 3.97 \times 10^{-11} (T^4 - 300^4)$$

$$P_{\text{cond}} = 5.37 \times 10^{-3} (T - 300)$$

第1表 ディフレクタの性能。

| $f_0: 2856.3\text{MHz (TM}_{210} \text{ mode)}$ |                       |                       |            |
|---|-----------------------|-----------------------|------------|
|   | DEF1                  | DEF2                  | calculated |
| $Q_0$   | 8500                  | 11000                 | 9970       |
| $\alpha$  | $1.64 \times 10^{-3}$ | $1.97 \times 10^{-3}$ |            |

である。熱平衡に達したとき、

$$P_{\text{beam}} = P_{\text{rad}} + P_{\text{cond}}$$

であることから、その時の温度、 $T=625\text{K}$  ( $352^\circ\text{C}$ )と得られる。このため熱伝導による放熱量を増大させるためにスリットに編組線を取り付けることにした。編組線の断面積  $S$  は編組線の質量  $M$ 、密度  $\rho$ 、長さ  $l$  から、

$$S = M / \rho l$$

として求めた。 $M=17\text{g}$ 、 $l=100\text{mm}$ の編組線を使うとすると、

$$P_{\text{cond}} = 6.24 \times 10^{-2} (T - 300)$$

であり、熱平衡に達したときの温度は、 $415\text{K}$  ( $142^\circ\text{C}$ )である。

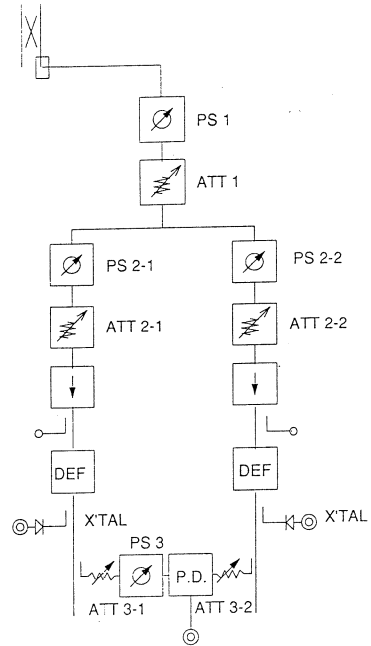
### 3.3 RF回路

ディフレクタへRFを入力する回路を第7図に示す。ディフレクタへ入力するRFのパワーの調整は減衰器で行なう。ディフレクタへの入力パワーは、ディフレクタからの出力を検波器で測定し算出する。位相の調整は移相器を使って行う。位相検出器にはダブルバランスドミキサーを用いており2つのディフレクタに掛けられたRFの位相差を検出する。

### 3.4 ビーム輸送系

電子ビームを効率よくきり出すために、スリットの前で切り出す方向に電子ビームを広げ、スリット通過後、再び収束させる。このため四極電磁石を用いたビーム輸送系をビームチョップに組み込んだ。

四極電磁石はPanofsky型の四極電磁石(第8図)を採用した。Panofsky型の四極電磁石は、従来の電磁石に較べて構造が簡単であり、安い費用で製作できるのが特徴である。この四極電磁石の磁場分布を計算機コードD-MOSによって求めた結果ビームの通るコイル中心部においては、精度の良い一定の磁場勾配であることが分かった。また測定した結果(第9図)からもコイルの中心部における磁場分布は精度の良いものであることが分かった。四極電磁石の仕



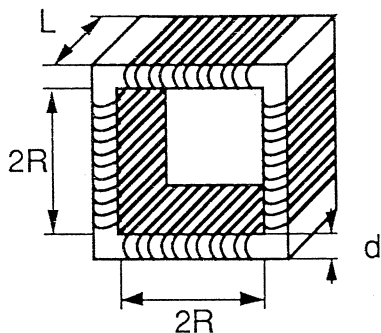
第7図 RF回路

PS : 移相器, ATT : 減衰器, X'TAL : 検波器, P.D. : 位相検出器。

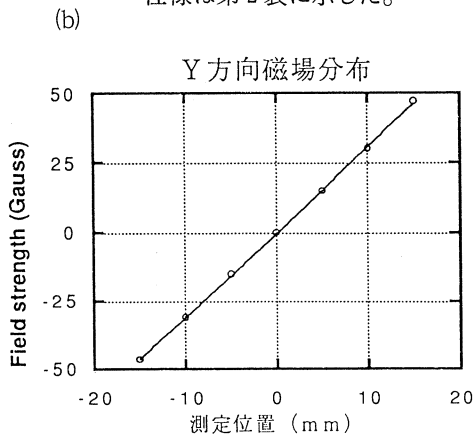
ディフレクタに入力するRFは移相器と減衰器を用いて行なう。検波器と位相検出器からディフレクタに入力されたRFの状態が分かる。

様を第2表に示す。

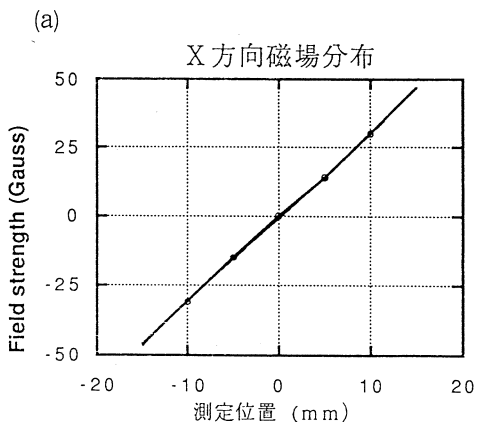
入射するビームと取り出すビームの対称性を考えてビーム輸送系は五つの四極電磁石により構成されている。四極電磁石を励磁したときの電子ビームの軌道を第10図に示す。



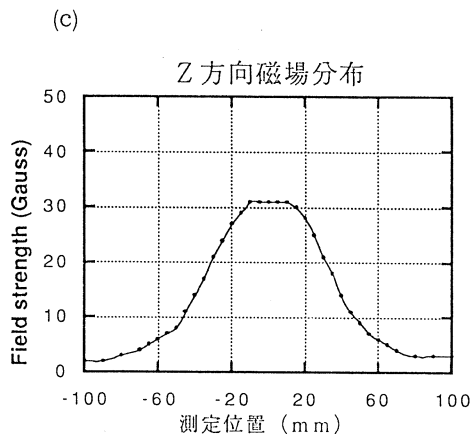
第8図 Panofsky型四極電磁石。  
仕様は第2表に示した。



第9図続き。



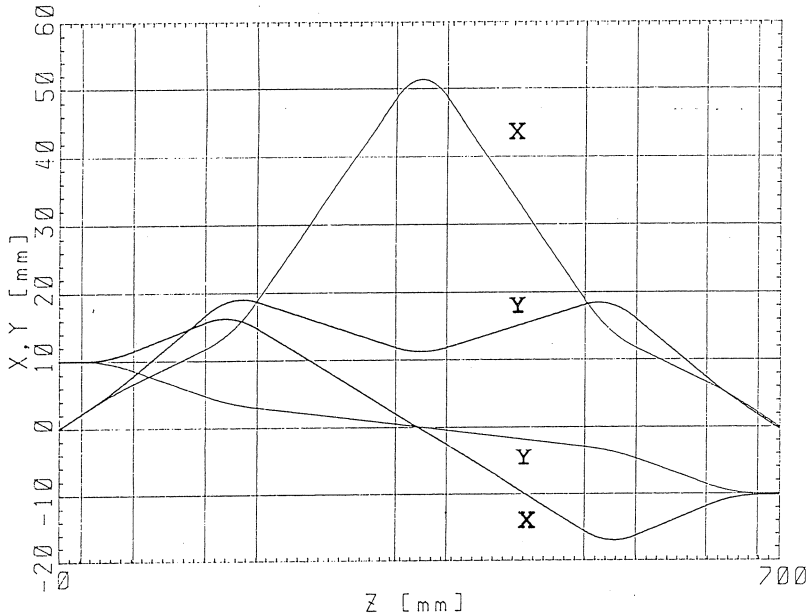
第9図 四極電磁石の磁場分布。



第9図続き。

第2表 四極電磁石の仕様。

|        |             |              |
|--------|-------------|--------------|
| 電磁石数   | $n$         | 5台           |
| ボア径    | $2R$        | 40mm         |
| 長さ     | $L$         | 50mm         |
| 起磁力    | $I \cdot N$ | 42A · Turn   |
| 磁場の強さ  | $g$         | 0.14~0.17T/m |
| 磁極表面磁場 | $B_s$       | 2.3~3.5mT    |

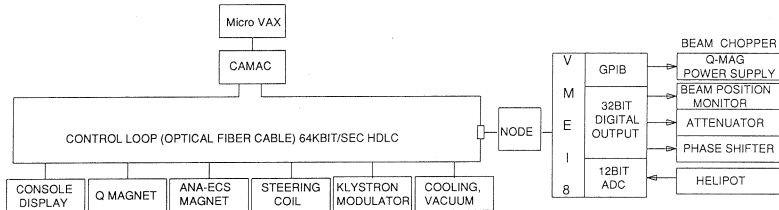


第10図 ビームチョッパ内でのビームの軌道。  
 ビーム軸上から入射した電子とエミッタンスの影響を見るためにビーム軸から10mmずれた所から入射した電子の軌道をプロットした。どちらもビーム軸に対して平行にビームが入射された場合である。

### 3.5 ビームチョッパの運転

ビームポジションモニタの出し入れ、ディフレクタに入力するRFのパワー、位相及び四極電磁石に流す電流値の設定などのビームチョッパの運転は他のライナックの機器と同様に<sup>3)</sup>、制御用コンピュータにより行なう。これは、運転方法の変化にあわせてコンソールを操作しやすいものにすることが容易であること、運転データの記録、保存が容易であること、制御室とビームチョッパの間に敷設するケーブルを少なくできること等の理由からである。

その構成を第11図に示す。ビームチョッパ制御装置 (VME-8) は既設の制御ループにつながれ、ホスト・コンピュータである Micro VAXとデータの送受信を行なう。



第11図 制御ループの構成。  
 ビームチョッパ制御用コンピュータ VME-8 は既設の制御ループに取付けた。



運転は Micro VAX のグラフィック・ディスプレイ上にビームチョッパ制御用ウィンドウを開きマウスとキーボードを使って行なう。

#### §4. ビームチョッパの組立

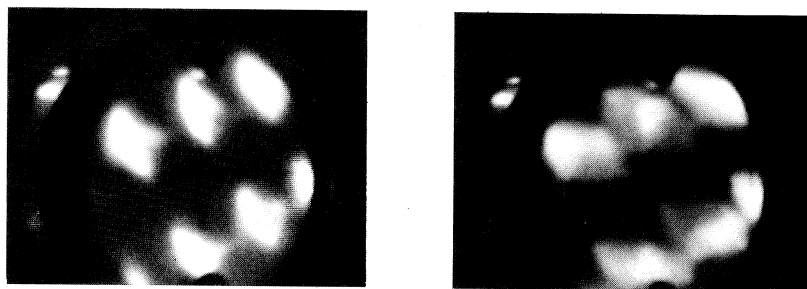
ビームチョッパの組立はオフラインとオンラインの2段階で行った。まずビームラインの外でディフレクタと四極電磁石を架台に取付け各々の中心をトランシットを用いて合わせた。その後、2日間ビームチョッパのベーキングを行ない、製造行程で付着した不純物を取り除いた。次に、ビームチョッパを架台ごと本体室に持ち込み加速管本体に組み込んだ。この時7番目の加速管(A7)を取り外し、そこにトランシットを据え付けて加速管のビーム軸とビームチョッパの四極電磁石の中心及び電子銃の軸を合わせた。

金属表面に付着したガスを出すためビームチョッパ組立後は加速管のエージングとビームチョッパのベーキングを行なった。1985年5月にRFウィンドウの交換を行なったときは加速管のエージングに3日間を要したことから、今回は4日間エージングを行なった。その後の排気で通常どおりの真空度に達し、実験中はビームチョッパ挿入前と変わらないエミッションを得ることができた。

#### §5. 試験結果とその考察

##### 5.1 ディフレクタ

四極電磁石を励磁していないときビームチョッパ内のビームポジションモニタには電子銃のグリッドのメッシュを通り抜けた電子の像が写る。ディフレクタへの入力パワーとディフレクタによるビームの振れ角との関係は(3)式で表されるので、ディフレクタへの入力パワー  $P_{in}$  とグリッドの像の拡がり  $\Delta x$  との関係は、



第12図 ビームポジションモニタに写ったグリッドのメッシュの像。

- (1) ディフレクタを働かせていないとき。
- (2) ディフレクタ使用時は片方向約2mm程像が大きくなっている。

$$\Delta x(\text{m}) = 0.754 \times \sqrt{P_{\text{in}}(\text{W})} \quad (4)$$

のようになる。

$P_{\text{in}} = 5.53\text{w}$ の時、グリッドの像の拡がりは第12図に示すように2mm位であった。これは(4)式より得られる結果に一致している。このことからディフレクタは設計どおりの性能である事が確認できた。

## 5.2 ビーム輸送系

四極電磁石を励磁しない状態では第12図のようにビームポジションモニタには電子銃のグリッドの像が写る。各四極電磁石に電流を流したところビームを収束することができ、四極電磁石を使った収束が可能であることが確認できた。ビームを最も絞った時の像を第13図に示す。



第13図 四極電磁石によりビームを最も絞った時のビームのプロファイル。

## 5.3 ビームチョッパ

当初コヒーレント放射光のスペクトルを観測してビームチョッパの動作試験を行なう予定であった。しかし、第2実験室のSEMで観測される電流値がビームチョッパ挿入前の10分の1であることから、ビームチョッパを挿入したことにより大部分のビームがこぼれていることが分かった。このため予定していた動作試験は行なうことができなくなった。

ディフレクを働かせない状態で四極電磁石を用いてビームポジションモニタ上でビームを集束させたと集束したビームは、ビームポジションモニタの中心に来ていなかった。これは鉄製のビームチョッパ用架台に引き寄せられ軸対称でなくなった電磁レンズG1, G2の漏れ磁場によりビームが曲げられたことに起因する。漏れ磁場の影響をなくすために、ビームチョッパを鉄板で覆い磁気シールドとした。この処置によりビームは中心を通るようになった。しかし依然電流値は増加しなかった。

以下の理由から、ビームはビームチョッパ入射前に失われたものと思われる。

ディフレクタでビームを振ることをせず、四極電磁石に電流を流さず収束をしない状態でのビームポジションモニターに写るグリッドの像の数は6個である。しかし第14図に示すようにグリッドには312個の穴がある。

電子銃からでたビームの63%が最初の加速管で加速される<sup>2)</sup>ことからグリッドを通過した電子の37%が失われると仮定しても、ビームポジションモニタのある位置(電子銃から460mm)

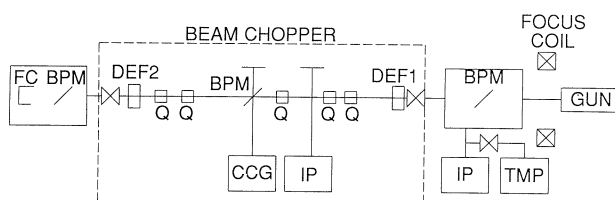
までに電子銃から出たビームの96%が失われたことになる。また、ディフレクタでビームを振ってスリットに当てても真空が悪くならなかったことから、スリットの位置においてもビームは減少していたものと思われる。さらに、電子銃からビームポジションモニタまで数個のイオンチェンバを配置してビームを流した結果イオンチェンバの振れが最も大きかったのは、ビームチョッパ前の変換フランジであった。このためビームチョッパに入る前にほとんどのビームが失われたのではないかと思われる。

ビームチョッパ取付け前は、ビームチョッパ前の変換フランジには収束用電磁レンズとしてG2と直列につながれたコイルが置かれていた。但し、ビームチョッパ取付け後このコイルを取り外している。このことは一因として考えられる。

## §6. まとめ

ビームポジションモニタに写ったグリッドの像の拡がりからディフレクタに用いたRF空洞が設計どおりの性能を満たしていることが確認できた。また、ビームモニタ上でビームを収束することができたことから判断すると四極電磁石を用いた電子ビームの収束は可能であろう。但し、四極電磁石の配置が適正であったかどうかの確認はできていない。

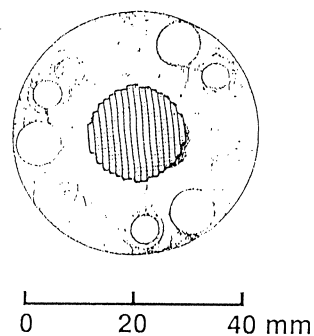
今後の課題は、ビームチョッパ挿入後の電子ビームの損失を押さえることである。



第15図 ビームチョッパ用テストベンチ。

上流側チャンバでは、電子銃直後のビームのプロファイルを見る。下流側のチャンバはビームチョッパを通り抜けたビームのプロファイルと電流値を見る。

現在第15図に示すようなテストベンチを作成している。このテストベンチではビームの状態を監視するため、ビームチョッパを通り抜けた電流を測定できるようにしてある。電子銃は、現在核理研のライナックで使用しているものと同じ型の電子銃を使う。この電源には既存の100kV、1mAの直流電源を用いる。このテストベンチを使って電子ビームがビームチョッパ



第14図 現在使用しているグリッド。

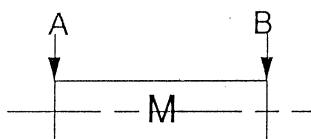
を通り抜けられるようなビームチョップ周辺の構成を再検討していく。

ビームチョップの製作にあたって、高エネルギー研究所および三菱電機株式会社よりいただいた協力に対し感謝する。

### 参 考 文 献

- 1) 伊師君弘, 柴田行男, 高橋俊晴, 三代秀昭, 蔦 勉, 大坂俊明, 池沢幹彦, 近藤泰洋, 小山田正幸, 新村信雄, 浦澤茂一, 中里俊晴, 加藤龍好, : 核理研研究報告 23 (1990) 131.
- 2) 中里俊晴, 小山田正幸, 新村信雄, 浦澤茂一, 加藤龍好, 池沢幹彦, 大坂俊明, 柴田行男, 伊師君弘, 蔦谷 勉, 高橋俊晴, 三代秀昭, 近藤泰洋 : 核理研研究報告 23 (1990) 140.
- 3) 柴崎義信, 小山田正幸, 浦澤茂一, 中里俊晴, 栗原 亮, 高橋重伸, 武藤正勝, 大沼忠弘, 加藤龍好, 庭野 智, 江口 剛 : *Proc. 15th Linear Accelerator Meeting in Japan* (1990) p. 103.
- 4) 武藤正勝, 柴崎義信, 大沼忠弘 : *Proc. 7th Symposium on Accelerator Science and Technology* (1987) p. 240.

## 付録. 対称偏向系の設計



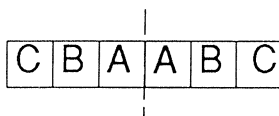
付1図

付1図について

A点, B点間のマトリックス  $M$  を

$$M = \begin{pmatrix} -1 & 0 \\ 0 & -1 \end{pmatrix} = -1$$

となるように設計すると, A点での  $(x, x')$  又は  $(y, y')$  がB点で対称になる。



付2図

付2図の様に構成した場合

$C \cdot B \cdot A \cdot A \cdot B \cdot C = -1$  となるためには

$$A \cdot B \cdot C + A^{-1} \cdot B^{-1} \cdot C^{-1} = 0$$

$$A \cdot B \cdot C = \begin{pmatrix} f_{11}(l, h) & f_{12}(l, h) \\ f_{21}(l, h) & f_{22}(l, h) \end{pmatrix} \text{ とすると}$$

$$A^{-1} \cdot B^{-1} \cdot C^{-1} = \begin{pmatrix} f_{11}(-l, -h) & f_{12}(-l, -h) \\ f_{21}(-l, -h) & f_{22}(-l, -h) \end{pmatrix} \text{ となる。}$$

$$\therefore A \cdot B \cdot C + A^{-1} \cdot B^{-1} \cdot C^{-1} = (f_{ij}(l, h) + f_{ij}(-l, -h)) = 0 \quad (1)$$

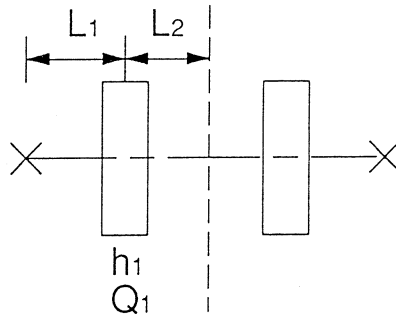
$f_{ij}$  をパラメータ  $l, h$  の符号の反転に関して偶関数の部分  $f_{ij}^{(+)}$  と奇関数の部分  $f_{ij}^{(-)}$  に分けて考えると

$$f_{ij}(l, h) = f_{ij}^{(+)}(l, h) + f_{ij}^{(-)}(l, h)$$

(1) 式が成り立つためには  $f_{ij}^{(+)}(l, h) = 0$  でなければならない。(このとき  $f_{ij}^{(-)}(l, h)$  は任意の値でよい)

1. 対称偏向系の場合, マトリックスの半分 ( $A \cdot B \cdot C$ ) を考える。その各成分のパラメータ  $l, h$  の符号反転に関して偶関数になる部分がゼロになればよい。

## 2. 四極電磁石 2 台の場合



付3図

付3図の様に構成する。

$L$ は自由空間長を  $h$ は四極電磁石の強さを表すものとする。

このとき、半分までのマトリックスを  $M_{2/2}$  とする。

$$\begin{aligned}
 M_{2/2} &= (L_2)(Q_1)(L_1) \\
 &= \begin{pmatrix} 1 & L_2 \\ 0 & 1 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} 1 & L_1 \\ \pm h_1 & 1 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} 1 & L_1 \\ 0 & 1 \end{pmatrix} \\
 &= \begin{pmatrix} 1 \pm h_1 L_2 & L_1 + L_2(\pm h_1 L_1 + 1) \\ \pm h_1 & \pm h_1 L_1 + 1 \end{pmatrix} \quad (2)
 \end{aligned}$$

このマトリックスで  $L_1$ ,  $L_2$ ,  $h_1$  の符号反転に関して偶関数になっているのは (1, 1) 成分 (2, 2) 成分である。従って (1, 1) 成分, (2, 2) 成分がゼロになればよい。しかし (1, 1) 成分, (2, 2) 成分がゼロになるためには  $h_1$ ,  $L_1$ ,  $L_2$  のうちいずれかがゼロにならなければならない。

このため四極電磁石 2 台の場合には解はない。

## 3. 四極電磁石 3 台の場合

$$\begin{aligned}
 M_{3/2} &= (Q_2)(L_2)(Q_1)(L_1) \\
 &= \begin{pmatrix} 1 \pm h_1 L_2 & L_1 + L_2(\pm h_1 L_1 + 1) \\ \pm h_2(1 \pm h_1 L_2) \pm h_1 & \pm h_2\{L_1 + L_2(\pm h_1 L_1 + 1)\} \pm h_1 L_1 + 1 \end{pmatrix} \quad (3)
 \end{aligned}$$

従って (1, 1) 成分がゼロになればよい。しかし (1, 1) 成分がゼロになるためには  $h_1$ ,  $L_2$  のうちいずれかがゼロにならなければならない。

このため四極電磁石 3 台の場合には解はない。

## 4. 四極電磁石 4 台の場合

$$M_{4/2} = (L_3)(Q_2)(L_2)(Q_1)(L_1)$$

$$= \begin{pmatrix} 1 \pm h_1 L_2 + L_3 M_{21} & L_1 \pm h_1 L_1 L_2 + L_2 + L_3 M_{22} \\ M_{21} & M_{22} \end{pmatrix} \quad (4)$$

ただし

$$M_{21} = \pm(h_2 - h_1) - h_1 h_2 L_2$$

$$M_{22} = L_1 M_{21} \pm h_2 L_2 + 1$$

である。

従って、(1, 1)成分(2, 2)成分がゼロになればよい。

4-1. (1, 1)成分=0

$$1 - h_1 L_2 + L_3 \{(h_2 - h_1) - h_1 h_2 L_2\} = 0 \quad (5)$$

$$1 - h_1 L_2 + L_3 \{-(h_2 - h_1) - h_1 h_2 L_2\} = 0 \quad (5')$$

上2式の和差から

$$h_1 L_2 + L_3 (h_2 - h_1) = 0 \quad (6)$$

$$1 - h_1 h_2 L_2 L_3 = 0 \quad (6')$$

$$h_1 = \frac{1}{\sqrt{L_2(L_2 + L_3)}} \quad (7)$$

$$h_2 = \frac{1}{L_3} \sqrt{\frac{L_2 + L_3}{L_2}} \quad (8)$$

$$M_{21} = \pm(h_2 - h_1) - h_1 h_2 L_2 = \frac{1}{L_3} (\pm h_1 L_2 - 1) \quad (9)$$

$$\begin{aligned} M_{22} &= \frac{L_1}{L_3} (\pm h_1 h_2 - 1) \pm h_2 L_2 + 1 \\ &= \frac{1}{L_3} (\pm h_1 L L_3 + L_3 - L_1) (L = L_1 + L_2 + L_3) \end{aligned} \quad (10)$$

4-2. (2, 2)成分  $M_{22} = 0$

$$h_1 L L_2 + L_3 - L_1 = 0$$

$$-h_1 L L_2 + L_3 - L_1 = 0$$

差を取ると

$$h_1 L L_2 = 0$$

従って四極電磁石4台の場合解はない。

5. 四極電磁石5台の場合

$$M_{5/2} = \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ \pm h_3 & 1 \end{pmatrix} M_{4/2}$$

$$= \begin{pmatrix} 1 \pm h_1 L_2 + L_3 M_{21} & L_1 \pm h_1 L_1 L_2 + L_3 M_{22} \\ \pm h_3 (1 \pm h_1 h_1 L_2 + L_3 M_{21}) + M_{21} & \pm h_3 (L_1 \pm h_1 L_1 L_2 + L_3 M_{22}) + M_{22} \end{pmatrix}$$

このマトリックスは  $L_1 L_2 L_3$ ,  $h_1 h_2 h_3$  の符号反転に関して (1, 1), (2, 2) 成分が偶関数となっている。

5-1. (1, 1) 成分 = 0  $M_{4/2}$  と同じなので結果も同じ

$$h_1 = \frac{1}{\sqrt{L_2(L_2+L_3)}} \quad (7')$$

$$h_2 = \frac{1}{L_3} \sqrt{\frac{L_2+L_3}{L_2}} \quad (8')$$

5-2. (2, 2) 成分 = 0

$$\begin{aligned} & \pm h_3 \left( \pm h_1 L_1 L_2 + L_1 + L_2 + L_3 \left( \pm h_1 \frac{L_1 L_2}{L_3} - \frac{L_1}{L_3} + 1 \right) \right) \pm h_1 \frac{L_2 L_3}{L_3} - \frac{L_1}{L_3} + 1 \\ & = h_1 h_3 L_1 L_2 \pm h_3 L - h_1 h_3 L_2 L \pm h_3 L_1 \pm h_1 \frac{L_2 L_3}{L_3} - \frac{L_1}{L_3} + 1 \\ & = -h_1 h_3 L_2 (L - L_1) \pm h_3 (L - L_1) \pm h_3 L_1 \pm h_1 \frac{L_2 L_3}{L_3} - \frac{L_1}{L_3} + 1 = 0 \end{aligned} \quad (11)$$

和差をとると

$$-h_1 h_3 L_2 (L - L_1) - \frac{L_1}{L_3} + 1 = 0 \quad (12)$$

$$h_3 (L - L_1) - h_1 \frac{L_2 L_3}{L_3} = 0 \quad h_3 = \frac{L_2 L_3 h_1}{L_3 (L - L_1)} = \frac{L}{L_2 + L_3} \frac{1}{L_3} \sqrt{\frac{L_2}{L_2 + L_3}} \quad (13)$$

(12) に代入すると

$$\begin{aligned} & -\frac{L_2 L_3 h_1^2}{L_3 (L - L_1)} L_2 (L - L_1) - \frac{L_1 - L_3}{L_3} \\ & = \frac{-L_2 L + (L_2 + L_3)(2L_3 + L_2 - L)}{L_3 (L_2 + L_3)} = 0 \end{aligned}$$

分子を  $L^2$  で割って  $x_i = L_i / L$  ( $i = 1, 2, 3$ ) とおくと ( $0 < x_i < 1$ )

$$x_2^2 + (3x_3 - 2)x_2 + 2x_3^2 - x_3 = 0$$

$$\therefore x_2 = \frac{1}{2} \left\{ -(3x_3 - 2) \pm \sqrt{(3x_3 - 2)^2 - 4(2x_3^2 - x_3)} \right\} \quad (14)$$



実数解を持つためにはルートの中が正

$$\therefore 0 < x_3 < 0.5359 \quad (15)$$

(14) 式を  $x_3$  に関する 2 次方程式

$$2x_3^2 + (3x_2 - 1)x_3 + x_2^2 - 2x_2 = 0$$

とおくと

実数解を持つための条件

$$(3x_2 - 1)^2 - 4 \cdot 2(x_2^2 + 2x_2) = x_2^2 + 10x_2 + 1 > 0$$

$0 < x_2 < 1$  ならいつでも成り立つ。

このように対称偏向系を設計するためには少なくとも 5 台の四極電磁石が必要である。

## サブミリからミリ波領域におけるコヒーレント・チェレンコフ放射の観測

科研, 工学部応用物理\*, 核理研\*\*

高橋俊晴・柴田行男・荒井史隆

伊師君弘・大坂俊明・蔦谷 勉

池沢幹彦・近藤泰洋\*・中里俊晴\*\*

浦沢茂一\*\*・加藤龍好\*\*

庭野 智\*\*・小山田正幸\*\*

### §1. 序 論

我々のグループはこれまで、サブミリからミリ波領域においてコヒーレント・シンクロトロン放射光のスペクトル分布や偏光度、及び、光強度とビーム電流との関係などを測定し、報告してきた<sup>1-6)</sup>。コヒーレント・シンクロトロン放射光のスペクトルは、古典電磁気学に沿って解釈できた<sup>3,4)</sup>。それによれば、光強度スペクトルからバンチ形状因子を計算し、バンチ形状因子の平方根をフーリエ変換することにより、バンチ内電子の分布を求めることができる。このように、スペクトルの形状から、バンチ内電子の分布を求めることは、バンチングされた電子集団からの放射ならば、シンクロトロン放射に限らず、ほかの放射機構の光でも行なうことができる。その一つとして、チェレンコフ放射が挙げられる。

チェレンコフ放射は<sup>6)</sup>、荷電粒子が、屈折率  $n$  の誘電媒質中を、その媒質中での光の速度 ( $c/n$ ) よりも早い速度 ( $u = \beta c$ )、すなわち  $u > c/n$  で通過する場合に放射する電磁輻射である。伝播の方向は  $\cos \theta_c = 1/\beta n$  で与えられ、 $\theta_c$  はチェレンコフ角と呼ばれる。まず、一個の電子が、長さ  $L$  の媒質中を通過する時に放射するチェレンコフ放射の強度 (フォトン数) は、単位波長幅 ( $d\lambda$ )、単位立体角 ( $d\Omega$ ) あたり、次式のように書ける。

$$F_0^{CR}(\lambda) = \frac{\alpha n}{\lambda} \left(\frac{L}{\lambda}\right)^2 \left(\frac{\sin X(\lambda, \theta)}{X(\lambda, \theta)}\right)^2 \sin^2 \theta d\lambda d\Omega \quad (1)$$

$$X(\lambda, \theta) = \frac{\pi n L}{\lambda} (\cos \theta_c - \cos \theta) \quad (2)$$

ここで、 $\alpha$  は微細構造定数、 $\lambda$  は波長である。

次に、バンチ列からの放射強度は、シンクロトロン放射光のときと同様に、次のように書くことができる<sup>5)</sup>。

$$P^{CR}(\lambda) = P_0^{CR}(\lambda) N_e \{1 + N_e f(\lambda)\} G(\lambda) \quad (3)$$

$$G(\lambda) = \left\{ \frac{\sin(\pi L_B N_B / \lambda)}{\sin(\pi L_B / \lambda)} \right\}^2 \quad (4)$$

$$f(\lambda) = \left| \int_{-\infty}^{\infty} S(r) \exp \frac{i 2 \pi r}{\lambda} dr \right|^2 \quad (5)$$

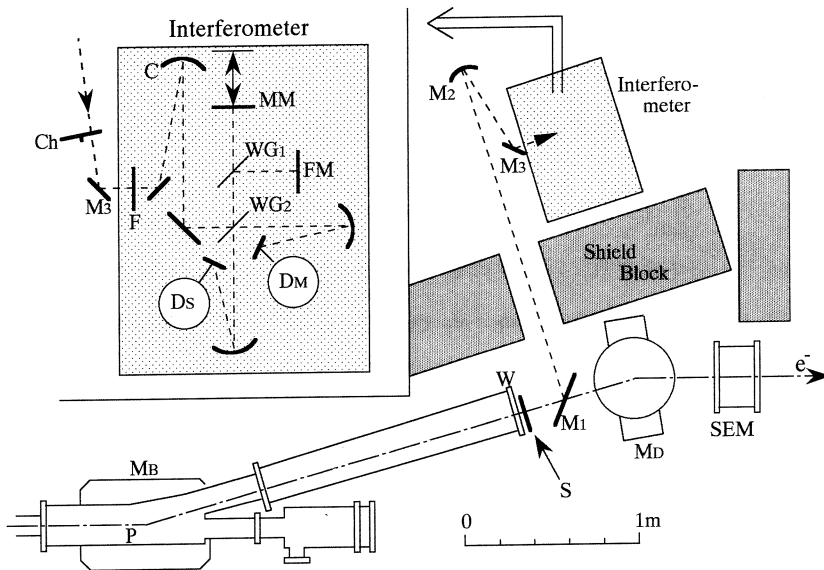
ここで、 $N_e$ 、 $N_B$ 、 $L_B$  はそれぞれ、バンチ内電子数、単位時間当りのバンチの数、バンチ間の距離である。 $G(\lambda)$  は、低分解測定の時、 $N_B$  で置き換えることができる。また、 $f(\lambda)$  はバンチ形状因子であり、バンチ内電子の分布関数  $S(r)$  のフーリエ変換で表現される。このように、コヒーレント・チェレンコフ放射のスペクトルを測定することにより、やはり、バンチ形状を調べることが可能である。

空気中でのコヒーレント・チェレンコフ放射は、マイクロ波領域ではすでに研究され、 $\theta$  のまわりの強度分布が Buskirk 達により調べられている<sup>7-9)</sup>。最近では、阪大の産研において<sup>10)</sup>、波長 0.4~3 mm のバンドパスフィルターを用いて、コヒーレント・チェレンコフ放射の測定が行なわれ、通常のチェレンコフ放射の強度よりも約  $10^{11}$  倍強い光が観測された。また、京大原子炉実験所においては<sup>11)</sup>、波長 1 mm~8 mm の範囲で、コヒーレント・チェレンコフ放射のスペクトルを観測し、波長 5 mm 付近での強度が、通常のチェレンコフ放射よりも、約  $10^7$  倍強いことが確認されている。しかし、コヒーレント・チェレンコフ放射のスペクトルを用いて、バンチ形状因子から電子分布を求めることが可能であるような、広い波長領域でのスペクトル形状は、これまでのところ測定されていない。

本研究では、25cm の空気層を通った電子からのチェレンコフ放射のスペクトルを、干渉計を用いて測定した。そして、測定されたスペクトルを用いてバンチ形状因子を計算し、そのバンチ形状因子から、バンチ内電子の分布を求めた。さらに、平均ビーム電流と強度の関係の測定や、各バンチから発生する、チェレンコフ放射の波束間の可干渉性についての測定を行なったので、それらについても報告する。

## §2. 実験方法

この実験での、測定系の配置を第 1 図に示す。アルミダクトの出口窓 W を通った電子ビームは、空気中に出た後、チェレンコフ光を発生する。この光は、25cm 下流に設置した直径 60 mm のアルミ箔の平面鏡  $M_1$  で 90 度曲げられ、200cm 離れた所にある直径 120mm の集光鏡  $M_2$  で集光された後、干渉計に入る。一方、平面鏡  $M_1$  を通過した電子ビームは、マグネット  $M_D$



第1図 測定系の配置。

$M_B$  : 偏向電磁石,  $P$  : シンクロトロン放射光発光点,  $W$  : アルミダクトの出口窓 (厚さ 2 mm),  $S$  : 蛍光板 (厚さ 0.5 mm),  $M_1$  : アルミ箔平面鏡,  $M_2$  : 集光鏡,  $M_3$  : 平面鏡,  $Ch$  : チョッパー,  $F$  : フィルター,  $C$  : コリメーター,  $WG_1$ ,  $WG_2$  : ワイヤグリッド,  $FM$  : 固定鏡,  $MM$  : 可動鏡,  $D_S$  : メインシグナル用検出器,  $D_M$  : モニター用検出器,  $M_D$  : 電磁石,  $SEM$  : 二次電子放出モニター,  $e^-$  : 電子ビーム。

で曲げられ、ビーム電流モニター SEM を通った後捨てられる。また、干渉計および検出器は、出口窓  $W$  やマグネット  $M_D$  などから発生する放射線の影響を避けるため、コンクリートブロックや鉛ブロックでシールドされている。蛍光板  $S$  は、電子ビームの位置や広がり、テレビカメラでモニターするために用いられている。

この測定で用いた干渉計は Martin-Puplett 型で、前回の実験<sup>5)</sup>で用いたものと同じであり、ビーム電流の変動による光強度の変化をモニターする検出器  $D_M$  も用いている。

今回のライナックの運転条件は、エネルギー 150 MeV、エネルギー幅  $\Delta E/E = 0.2\%$ 、繰り返し 300 pps、パルス幅 2  $\mu\text{sec}$  であり、平均電流は 0.3  $\mu\text{A}$  であった。

また、強度の較正は、チェレンコフ光の測定と同じ光学系の配置で、黒体放射を測定して行った。すなわち、平面鏡  $M_1$  から 10 cm 離れた位置に黒体炉を置き、そこから放射される 1200 K の黒体放射により較正した。

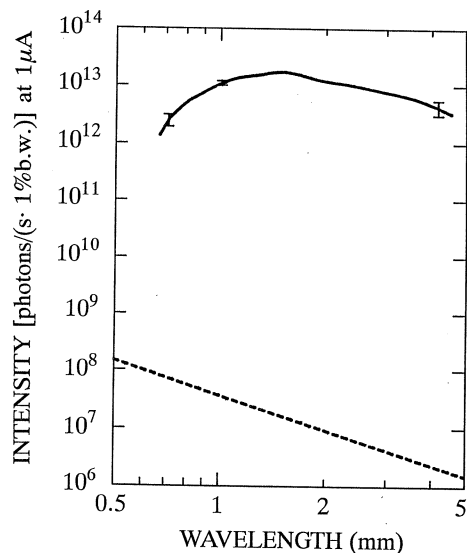
### §3. 結果と考察

#### 3.1 コヒーレント・チェレンコフ放射のスペクトル

コヒーレント・チェレンコフ放射のスペクトルは、短波長カットフィルター（カットオフ波長： $290\ \mu\text{m}$ ）を通して測定されたインターフェログラムを、フーリエ変換することにより求めた。その結果を第2図に実線で示す。なお、計算には最大光路差が5 mmの両側インターフェログラムを用い、スペクトルの分解は約 $2\ \text{cm}^{-1}$ である。得られたスペクトルは、波長1.5 mm付近にピークがあり、それよりも短波長側では、急激に強度が弱くなっている。また、この図には、 $L=25\text{cm}$ 、 $n=1.00027$ として数値計算された、インコヒーレントな場合のチェレンコフ放射のスペクトルが破線で示されている。それぞれの強度は、平均電流 $1\ \mu\text{A}$ の場合に対応する強度に換算してある。図中の誤差棒は、コヒーレントチェレンコフ放射の測定における、測定ごとのデータのばらつきを含んでいる。この図を見てわかるように、測定されたスペクトル強度は、インコヒーレントなチェレンコフ放射の計算値よりも、波長2 mm付近で $10^6$ 倍程度強められていることがわかる。

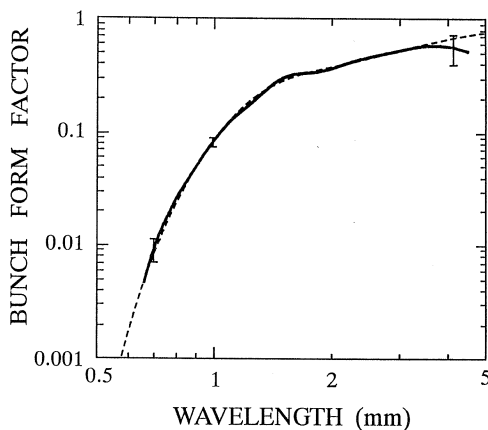
#### 3.2 バンチ形状因子とバンチ内電子の分布

測定で得られたスペクトルからバンチ形状因子を計算した結果を、第3図に実線で示す。得られたバンチ形状因子を用いると、(5)式の逆フーリエ変換を行なうことにより、バンチ内電子の分布関数を計算することができる。数値積分を行なうために、変数を変換して次式を用いた。



第2図 コヒーレント・チェレンコフ放射のスペクトル。

実線は、黒体放射により較正し、さらに平均ビーム電流 $1\ \mu\text{A}$ に換算した強度を示す。破線は、数値計算された通常のチェレンコフ放射の強度である。



第3図 バンチ形状因子。

実線は、測定スペクトルから得られたバンチ形状因子。破線は、(8)式に、最小自乗法で求めたパラメーターをあてはめた結果を示す。

$$S(r) = \int \sqrt{f(\nu)} \cos(2\pi\nu r) d\nu \quad (6)$$

$\nu$ は波数 ( $\nu = 1/\lambda$ ) であり、この変数で表した今回の測定波数領域は  $2.2 \sim 15 \text{ cm}^{-1}$  となる。(6)式の積分は、 $0 \sim 15 \text{ cm}^{-1}$  の範囲で行なった。この時、測定領域以外の  $0 \sim 2.2 \text{ cm}^{-1}$  の範囲は、 $0 \text{ cm}^{-1}$  でバンチ形状因子が1となる点と、 $2.2 \text{ cm}^{-1}$  での測定データとの間を直線で結んだデータを用いた。このような方法で求められた分布関数を第4図に実線で示す。この分布のメイン

ピークは、ガウス分布に似た形であり、その半値幅は  $0.56 \text{ mm}$  である。これは、ライナックの加速条件から推定されるバンチ長  $1.7 \text{ mm}$  よりも短い値になっている。

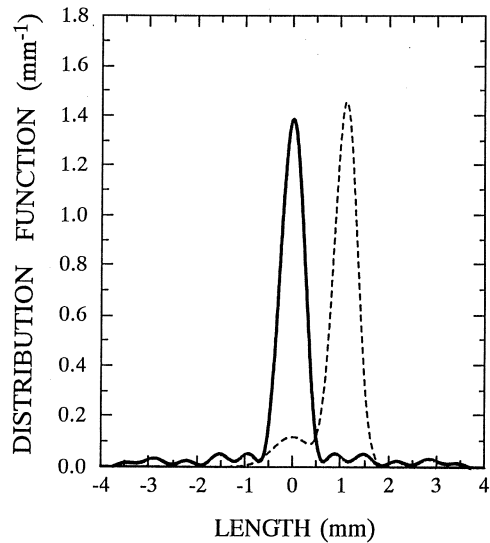
ところで、(6)式を直接計算した場合、分布関数の非対称な成分は求めることができない。また、得られた分布関数の裾野には、積分範囲を有限にとったことによる振動が見られる。そこで、一つのシミュレーションとして、分布関数に2個以下のガウス分布の合成を仮定し、(5)式を用いてバンチ形状因子を計算して、最小自乗法により測定データに合うパラメーターを求めてみた。この時、分布関数  $S(r)$ 、バンチ形状因子  $f(\lambda)$  を式で表せば次のようになる。 $r$ は、バンチ内に原点を持つ、電子の軌道方向の座標である。

$$S(r) = \frac{a}{\sqrt{2\pi}\sigma_1} \exp\left(-\frac{r^2}{2\sigma_1^2}\right) + \frac{1-a}{\sqrt{2\pi}\sigma_2} \exp\left(-\frac{(r-L)^2}{2\sigma_2^2}\right) \quad (7)$$

$$f(\lambda) = a^2 \exp\left\{-4\left(\frac{\pi\sigma_1}{\lambda}\right)^2\right\} + (1-a)^2 \exp\left\{-4\left(\frac{\pi\sigma_2}{\lambda}\right)^2\right\} + 2a(1-a) \cos\left(\frac{2\pi L}{\lambda}\right) \exp\left\{-\frac{2\pi^2(\sigma_1^2 + \sigma_2^2)}{\lambda^2}\right\} \quad (8)$$

ここで、パラメーターは次の4変数である。

$a$ : 2個のガウス分布の比率を決める定数



第4図 バンチ内電子分布関数。  
実線は、第3図の測定スペクトルから求めた分布関数。破線は、最小自乗法で計算されたパラメーターを代入した(7)式の分布を示す。

$\sigma_1, \sigma_2$ : それぞれ,  $\sigma_1 \times 2.36, \sigma_2 \times 2.36$ が, 半値幅に相当

$L$ : 2個のガウス分布の, 中心間の距離

この最小自乗法によるパラメーターの最確値は,  $a=0.12, \sigma_1=0.40\text{mm}, \sigma_2=0.24\text{mm}, L=1.1\text{mm}$ である。これに対応する分布関数が, 第4図の破線である。その分布は, 約1.9mmのバンチに, 約0.57mm幅のスパイク状の構造を持っている。このようなシミュレーションの結果や, 測定値から直接求めた電子分布を見ると, 今回の運転でライナックから打ち出されるバンチ内では, 電子の大部分が0.5mm程度の狭い範囲に分布していることがわかる。

ところで, シンクロトロン放射の解析<sup>3,4)</sup>から求められた分布関数の幅は約0.21mmであった。今回, チェレンコフ放射の解析から求められた分布関数の幅は, その値の約2.7倍である。両者の違いの原因として二つのことが考えられる。まず, マシントイムごとにビーム条件が微妙に異なり, バンチ長が変化している可能性がある。例えば, 放射光の測定においても, 文献3)と5)の放射光強度のスペクトル分布に見られるように, マシントイムにより, そのスペクトル分布に違いがある。他の一つは, 電子が放射を起こすまでの経路の違いである。チェレンコフ放射は, 放射光の発光点よりも下流で発生しており, 放射光の発光点で曲げられ, アルミダクトの出口窓(厚さ2mm)と蛍光板(A1板0.5mm)を通過することが, 余分に加わる。従って, 今の段階では原因を断定するのは難しく, 今後, 同じ実験条件で, シンクロトロン放射光とチェレンコフ放射を比較して測定する必要がある。

いずれにしても, コヒーレント・チェレンコフ放射のスペクトルから求められた分布の幅は0.56mmであり, 加速条件から予想される値1.7mmよりも小さい。従って, バンチには, 幅の狭いスパイク状の構造があると言え, チェレンコフ放射においても, シンクロトロン放射光の観測により得られた結果と, 定性的には同じ結果が得られたと結論できる。

### 3.3 強度と平均ビーム電流の関係

平均ビーム電流の変化と, 検出器  $D_s$  で受ける光強度の変化との関係を測定した結果が, 第5図である。今, ビームパルスの繰り返しとパルス幅は一定であるので, 平均ビーム電流の変化は, 一つのバンチ内に含まれる電子数の変化に対応している。図中には, 最小自乗法を用いて, 測定データに当てはめた直線が描かれており, 傾きは1.6である。すなわち, 強度が電流の1.6乗に比例していることになる。完全にコヒーレントであれば, 光強度はバンチ内電子数の2乗, すなわち, 平均ビーム電流の2乗に比例し, 第5図の傾きは, 2とならなければならない。図に, 傾き2の線が破線で示されている。測定値は, ほぼ実験誤差以内でこの破線上にあることがわかる。最小自乗法により得られた傾きが, 2よりも小さい値になっている理由は,

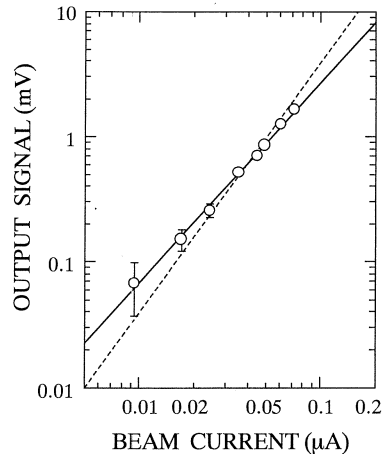
恐らく実験誤差によるものと思われる。

### 3.4 異なるバンチから発生するコヒーレント・チェレンコフ放射の干渉

異なるバンチから発生するコヒーレント・シンクロトロン放射光の可干渉性は、文献5)で議論されている。今回のチェレンコフ放射の観測においても、バンチは2856MHz、すなわち、105mmの間隔でライナックから打ち出され、それぞれのバンチから放射されるチェレンコフ光を測定している。従って、干渉計で105mm以上の光路差をつければ、次のバンチから放射されるチェレンコフ光との干渉を見ることができはるはずである。第6図に、最大光路差を110mmにとった時のインターフェログラムを示す。この時の測定誤差は約0.6mVである。この図を見てわかるように、光路差0mmのほかに105mmでも再び強度が最小となっている。これは、各バンチから放射される光の波束が、可干渉であることを示しており、各バンチからのチェレンコフ放射の位相が、そろっていることがわかる。このことは、(3)~(5)式に示したような、電磁気学による解析の正当性を裏付ける結果となっている。

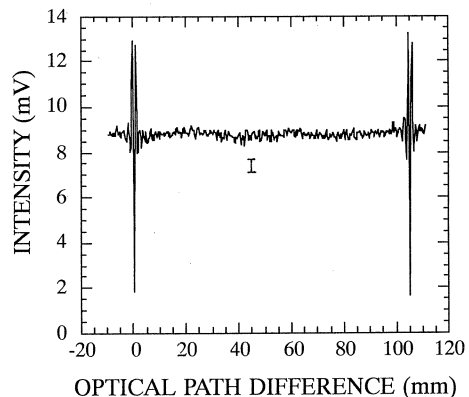
## §4. 結 論

空气中を走らせた電子ビームから放射される、コヒーレント・チェレンコフ放射のスペクトルを、波長範囲0.6~5mmで測定した。そして、測定されたスペクトルを用いてバンチ形状を求めた結果、シンクロトロン放射光での解析と同



第5図 平均ビーム電流と光強度の関係。

光強度は、メインシグナル用検出器  $D_s$  で受けた強度である。実線は、最小自乗法により測定点に当てはめた直線で、強度が電流の1.6乗に比例することを示す。破線は、強度が電流の2乗に比例する直線である。



第6図 最大光路差を110mmとした時のインターフェログラム。

サンプリング間隔は、光路差で0.1mmである。図中の誤差棒は、測定誤差で約0.6mVである。



様の結果を得た。すなわち、バンチが、約0.5mm幅の鋭いスパイク状の構造を持った、ガウス分布に近い形状をしているということが、チェレンコフ放射の測定からもわかった。次に、平均ビーム電流、すなわちバンチ内電子数の変化と、光強度との関係を測定し、強度が電流のほぼ2乗に比例する結果を得た。さらに、干渉計の光路差を、バンチ間の間隔105mmよりも大きくとった時のインターフェログラムを測定することにより、バンチ間での干渉を確認した。

最後に、ライナックの運転に協力して頂いた方々に、感射の意を表する。

### 参 考 文 献

- 1) T. Nakazato, M. Oyamada, N. Niimura, S. Urasawa, O. Konno, A. Kagaya, R. Kato, T. Kamiyama, Y. Torizuka, T. Nanba, Y. Kondo, Y. Shibata, K. Ishi, T. Ohsaka and M. Ikezawa : Phys. Rev. Lett. **63** (1989) 1245.
- 2) Y. Shibata, K. Ishi, T. Ohsaka, H. Mishiro, T. Takahashi, M. Ikezawa, Y. Kondo, T. Nakazato, M. Oyamada, N. Niimura, S. Urasawa, R. Kato and Y. Torizuka : Nucl. Instrum. & Methods **A301** (1991) 161.
- 3) 伊師君弘, 柴田行男, 高橋俊晴, 三代秀昭, 蔦谷勉, 大坂俊明, 池沢幹彦, 近藤泰洋, 小山田正幸, 新村信雄, 浦沢茂一, 中里俊晴, 加藤龍好 : 核理研研究報告 **23** (1990) 131.
- 4) K. Ishi, Y. Shibata, T. Takahashi, H. Mishiro, T. Tsutaya, T. Ohsaka, M. Ikezawa, Y. Kondo, T. Nakazato, S. Urasawa, N. Niimura, R. Kato and M. Oyamada : Phys. Rev. **A43** (1991) 5597.
- 5) Y. Shibata, T. Takahashi, K. Ishi, F. Arai, H. Mishiro, T. Tsutaya, T. Ohsaka, M. Ikezawa, Y. Kondo, S. Urasawa, T. Nakazato, R. Kato, S. Niwano and M. Oyamada : 核理研研究報告 **23** (1990) 279.
- 6) W. K. H. Panofsky and M. Phillips : Classical Electricity and Magnetism (Addison-Wesley, Cambridge, 1961) p. 373.
- 7) F. R. Buskirk and J. R. Neighbours : Phys. Rev. **A28** (1983) 1531.
- 8) J. R. Neighbours, F. R. Buskirk and A. Saglam : Phys. Rev. **A29** (1984) 3246.
- 9) X. K. Maruyama, J. R. Neighbours, F. R. Buskirk, D. D. Snyder, M. Vujaklija and R. G. Bruce : J. Appl. Phys. **60** (1986) 518.
- 10) J. Ohkuma, S. Okuda and K. Tsumori : Phys. Rev. Lett. **15** (1991) 1967.

- 11) Y. Shibata, K. Ishi, T. Takahashi, F. Arai, M. Ikezawa, K. Takami, T. Matsuyama,  
K. Kobayashi, Y. Fujita : Phys. Rev. A (印刷中).

## 回折格子分光計によるコヒーレント放射光の 高分解分光測定

科研, 工学部応用物理\*, 核理研\*\*

柴田行男・高橋俊晴・荒井史隆

伊師君弘・蔦谷 勉・大坂俊明

池沢幹彦・近藤泰洋\*・加藤龍好\*\*

庭野 智\*\*・中里俊晴\*\*

蒲沢茂一\*\*・小山田正幸\*\*

### §1. 序

バンチ内の個々の電子からのシンクロトロン放射の位相がそろったコヒーレント放射光の遠赤外〜ミリ波域での光学的特性については、これまで核理研で行ってきた分光測定によりかなりのことが明らかにされてきた<sup>1-5)</sup>。即ち、スペクトル強度は通常のシンクロトロン放射に比し桁違いに強く増強されており、その増強度はバンチ内電子数の程度である。強度はビーム電流の自乗に比例しており、電子軌道面に強く偏光している。また、スペクトルはバンチ内電子の分布を反映しており、スペクトルを解析することにより電子分布に関する情報を得ることが出来る。

さらに、ライナックの電子ビームは周期的なバンチ列をなしているが、そのような周期的なバンチからのシンクロトロン放射については、各バンチからのコヒーレント放射光が同一位相で放射されており、隣接するバンチから放射される波束は可干渉であることが、最近の干渉実験により明らかとなった<sup>5)</sup>。それ故、周期的なバンチから放射されるコヒーレント放射光のスペクトルは、高分解能の分光計で測定すればバンチ周期を基本周波数とする高調波からなる線状のスペクトルとなる。一方、低分解測定では多数の線状のスペクトルの平均を見ていることに相当し、単一バンチからのコヒーレント放射光に比例する連続スペクトルが得られると云うことになる。

我々のこれまでのコヒーレント放射光の測定においては、広い波長範囲にわたる連続スペクトルの測定に主眼がおかれていた。そのため、広いダイナミックレンジと大きな回折格子による高い分解能の回折格子型分光計を使用しているにも拘らず、これまでコヒーレント放射光のスペクトルが線状のスペクトルに分解されては観測されていない。そこで今回、回折格子型分

光計のスリット幅，サンプリング間隔等の測定条件を高分解分光測定に適するように設定し，コヒーレント放射光の線状のスペクトルの測定を試みた。

## §2. 実 験

第二実験室Ⅱ系での実験のセットアップはこれまでと同様である<sup>4)</sup>。150MeVの電子ビームを磁場中に導き，軌道半径2.44mの加速運動で放射光を発生させている。

測定に使用した分光計は，コヒーレント放射光の測定のために製作されたものである<sup>6)</sup>。刻線数20/mmから0.15625/mmにわたる8個の回折格子により，波長20 $\mu$ mから8mm迄の広い波長範囲のスペクトルを測定することが出来る。

核理研のライナックでは，加速周波数が2856MHzであるからバンチ間距離は約105.0mmである。従って高分解では基本波長を105.0mmとする高調波が線状のスペクトルとして観測されることになる。その線状のスペクトルの間隔は0.0952 $\text{cm}^{-1}$ なので，分光計の分解をそれ以上の高分解にすればスペクトル形状が測定できる。

一般に分光計の分解 $\Delta\nu$ はスリットが有限の幅を持つことに対応する分解 $\Delta\nu_s$ と回折格子の刻線数で決まる理論的分解 $\Delta\nu_d$ によって決められる<sup>7)</sup>。いま，分解を波数で表せばそれらは次のようになる。

$$\Delta\nu = \{(\Delta\nu_s)^2 + (\Delta\nu_d)^2\}^{1/2} \quad (1)$$

$$\Delta\nu_s = Sg \cos \beta / (\lambda^2 m f) \quad (2)$$

$$\Delta\nu_d = \nu / (m N_i) \quad (3)$$

ここで， $\nu$ は波数を表し，S, g,  $\beta$ , m, f,  $N_i$ はそれぞれのスリット幅，格子定数，回折角，回折次数，焦点距離および総刻線数を示す。分光計の回折格子はCzerny-Turner方式にマウントされているので回折角と波長の関係は次式で与えられる。

$$\lambda = 2 g \cos(\alpha/2) \sin(\beta - (\alpha/2)) / m \quad (4)$$

ここで $\alpha$ は回折格子に対する入射光と回折光との間の角を表し，使用した分光計においては， $f = 75\text{cm}$ ， $m = 1$ ， $\alpha = 22^\circ$ である。また，回折格子の有効刻線面積は $128 \times 154\text{mm}^2$ である。

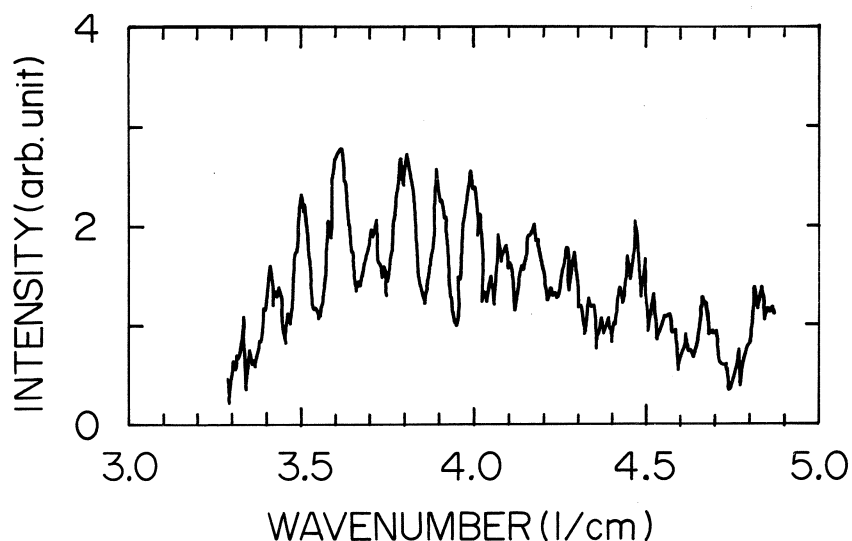
測定に使用した回折格子と波長範囲を第1表に示す。測定においてはスリット幅はすべて3mmに固定した。このスリット幅による分解 $\Delta\nu_s$ は測定された全波長域で0.0952 $\text{cm}^{-1}$ より十分小さい。回折格子はパルスモーターで駆動(0.014 $^\circ$ /パルス)されているので，サンプリングは0.0952 $\text{cm}^{-1}$ のスペクトル幅中に少なくとも10点の測定が出来るように3パルス毎に行った。検出器には極低温シリコンボロメーターを用いた。

第1表 回折格子と測定波長範囲。

| 回折格子 | 格子定子<br>(mm) | 総刻線数<br>(本) | 測定波長<br>(mm) | 測定波数<br>( $\text{cm}^{-1}$ ) |
|------|--------------|-------------|--------------|------------------------------|
| G3   | 0.8          | 192         | 0.65-1.0     | 10-15.4                      |
| G4   | 1.6          | 96          | 0.9-1.4      | 7-11                         |
| G5   | 3.2          | 48          | 2.0-3.0      | 3.3- 5                       |

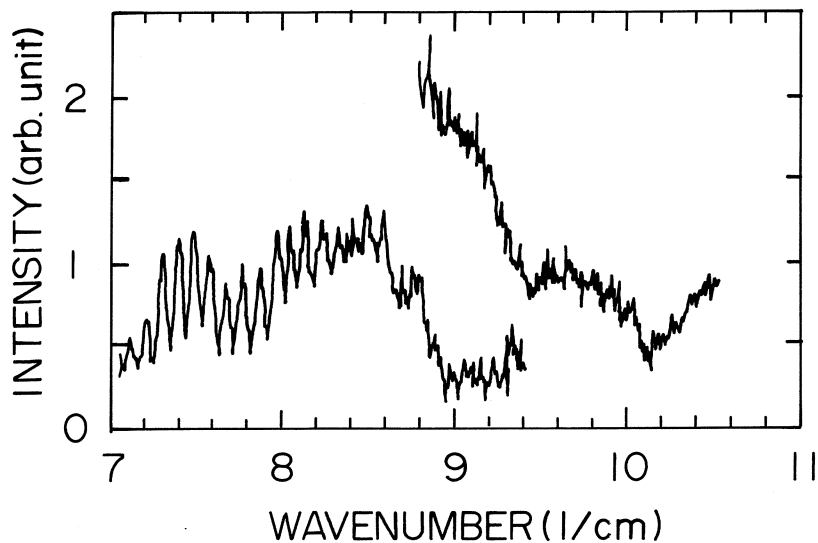
### §3. 結果と考察

測定結果を第1-3図に示す。検出器の出力が波数に対して示されており、ビーム電流の変動はモニターにより補正されている。第1図は回折格子G5による測定であり、第2図はG4、

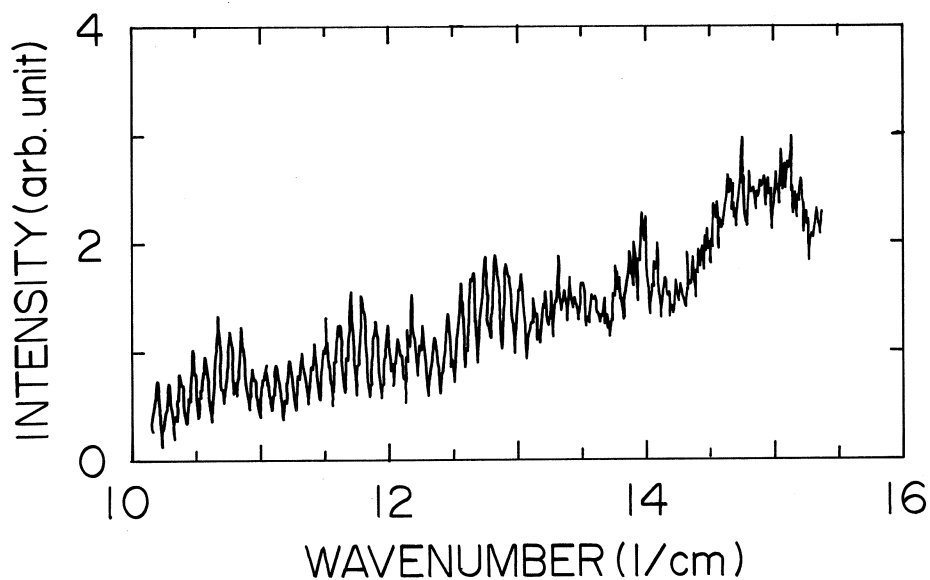


第1図 コヒーレント放射光の高分解スペクトル。測定に使用した回折格子はG5。第3図はG3によるスペクトルである。第2図では $9\text{ cm}^{-1}$ のところではフィルタが切り替えられている。

G3, G4およびG5によるいずれの高分解測定においても、測定範囲のうち低波数(長波長)側では周期が約 $0.1\text{ cm}^{-1}$ の振動が明瞭に認められるが高波数(短波長)に行くにつれて振幅が小さくなりノイズと区別できなくなっている。それぞれの長波長側での振動が、ライナックの加速周波数を基本周期( $\nu_F$ )とする高調波であるならば振動の山の中心波数は次式で与えられる。



第2図 コヒーレント放射光の高分解スペクトル。測定に使用した回折格子はG 4。  
9 cm<sup>-1</sup>付近でフィルターが切り換えられている。



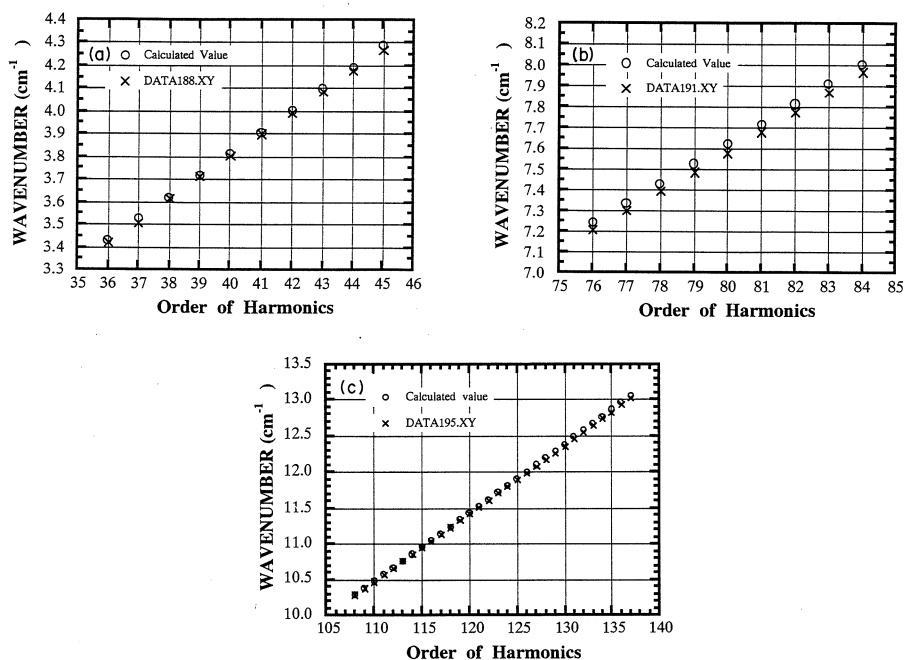
第3図 コヒーレント放射光の高分解スペクトル。測定に使用した回折格子はG 3。

$$\begin{aligned}\nu_n &= n \times \nu_F \\ &= n \times 2.856 \times 10^9 / C\end{aligned}\tag{5}$$

ここに  $n$  は高調波の次数を表し,  $c$  は光速を示す。

第(5)式から計算された高調波の振動数と測定された振動の山の中心波数との関係を第4図に

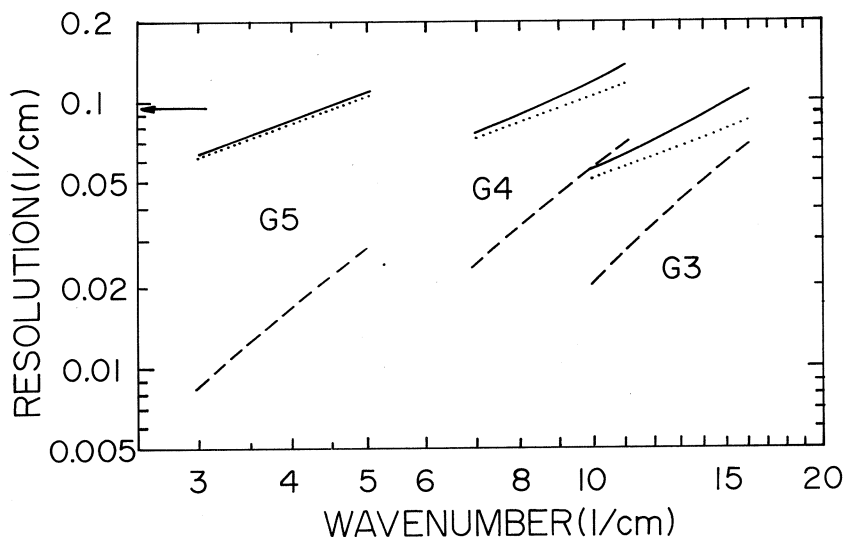
示す。丸印は計算値（次数と振動数）を表し、測定された振動数は×印で表されている。計算された高調波の振動数と測定された振動数とが1対1対応し、測定された振動数に対応する次数に飛びが無いことに明らかなように、第1-3図の低波数（長波長）側に明瞭に現れている振動スペクトルは、ライナックの加速周波数の高調波である。なお、第4図(b)で計算値と測定振



第4図 線状のスペクトルの中心振動数の計算値と測定値との比較。(a)が回折格子G 5, (b)および(c)がG 4 およびG 3による結果を示す。横軸は高調波の次数を表し、縦軸は振動数を波数単位で表す。○印は計算値, ×印は測定値を表す。

動数の差が(a)及び(c)のそれに比し大きい。この事は、分光計の回折格子を置く台座が3個あるがその中G 4を設置する台座2に、波長走査用パルスモーターの回転角と実際の回折格子の回転角の間に、 $\Delta\nu = 0.041\text{cm}^{-1}$ に相当する差があることを意味していると考えられる。同じようにして、計算値と測定値の差から回折格子G 3 (台座1)では $0.031\text{cm}^{-1}$ , 回折格子G 5では $0.012\text{cm}^{-1}$ に対応する波長走査の誤差があることが分かる。この波数誤差は通常の分光測定においては支障の無い程度のものである。

回折格子G 3, G 4, G 5のいずれの測定においても高波数（短波長）側では振動が認められない。そこでスリット幅3 mm に対する分解を(1)式により計算し第5図に示す。図にはスリット幅3 mm に対する計算値 $\Delta\nu_c$  (破線) および $\Delta\nu_d$  (点線) もあわせて示した。第5図に明らかなように、高波数側では、線状のスペクトルを観測するためには分光計の分解が不十分である。



第5図 スリット幅3mmに対する分光計の分解。分解は実線で示し、破線および点線は $\Delta\nu_s$ および $\Delta\nu_d$ を表す、左上の矢印は線状のスペクトルを測定するのに必要な分解を示す。

また、第1-3図の線状のスペクトルが不明瞭となる波数が第5図で分光計の分解が $0.0952\text{ cm}^{-1}$ より低下する波数とほぼ一致している。しかも、分光計の分解を制限しているのが、主として総刻線数で決まる理論的な分解であり、スリット幅で制限される分解ではないということも明らかである。コヒーレント放射光を光源としたミリ波の測定においては、測定に使用した分光計の回折格子の有効刻線幅が $154\text{ mm}$ と云う大きさであるとは云え、総刻線数が分解を支配しているということに注意しなければならない。即ち、たとえスリット幅を $3\text{ mm}$ より大きく広げた場合でも、必ずしもそのスリット幅で分解が決まるとは云えない。

分光装置の分解を実験的に決めるには、強度が等しく波長の差が既知の二本の線スペクトルを測定するか線幅が非常に小さい一本の線スペクトルの線幅を測定するのが実際的である。ミリ波領域においては、ここで測定したようなライナックからの周期的なコヒーレント放射光が、ミリ波の全波長域で、波長の既知な線状のスペクトルとなっており、多数のバンチからの波束の干渉の結果各成分のスペクトルの幅が充分小さければ、ミリ波分光装置の分解を実験的に決める為の光源となり得る可能性がある。

#### §4. まとめ

コヒーレント放射光のスペクトルを回折格子型分光計を用いて高分解で測定した。それによ



り、コヒーレント放射光がバンチ間隔を基本周期とする高調波からなる線状のスペクトルであることを確認した。

コヒーレント放射光を光源とした測定を行うとき、線状のスペクトルが望ましくない場合には、 $0.0952\text{cm}^{-1}$ より高分解とならぬよう測定条件を設定しなければならない。

また、コヒーレント放射光を光源としたミリ波領域での分光測定においては、使用した分光計の分解は、主として回折格子の総刻線数で決まる理論的な分解によって支配されていることが分かった。測定に使用した回折格子の有効刻線幅は154mmであり、決して小さくはない。しかしここでの測定結果は、単一バンチモードまたはもっとバンチ間隔の大きなライナックからのコヒーレント放射光を光源とした分光測定においては、もっと大きな回折格子を用いなければ高分解測定が出来ないと云うことを示している。

実験に際しては核理研のマシングループを中心とする皆様のご協力を仰ぎました。ここに記して感謝致します。

## 参 考 文 献

- 1) T. Nakazato, M. Oyamada, N. Niimura, S. Urasawa, O. Konno, A. Kagaya, R. Kato, T. Kamiyama, Y. Torizuka, T. Nanba, Y. Kondo, Y. Shibata, K. Ishi, T. Ohsaka and M. Ikezawa : Phys. Rev. Lett. **63** (1989) 1245.
- 2) T. Nakazato, M. Oyamada, N. Niimura, S. Urasawa, R. Kato, Y. Kondo, Y. Shibata, K. Ishi, T. Ohsaka and M. Ikezawa : Particle Accel. **33** (1990) 141.
- 3) Y. Shibata, K. Ishi, T. Ohsaka, H. Mishiro, T. Takahashi, M. Ikezawa, Y. Kondo, T. Nakazato, M. Oyamada, N. Niimura, S. Urasawa, R. Kato and Y. Torizuka : Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. **A301** (1991) 161.
- 4) K. Ishi, Y. Shibata, T. Takahashi, H. Mishiro, T. Ohsaka, M. Ikezawa, Y. Kondo, T. Nakazato, S. Urasawa, N. Niimura, R. Kato and M. Oyamada : Phys. Rev. **A43** (1991) 5597.
- 5) Y. Shibata, T. Takahashi, K. Ishi, H. Mishiro, F. Arai, T. Ohsaka, M. Ikezawa, Y. Kondo, T. Nakazato, S. Urasawa, R. Kato, S. Niwano and M. Oyamada : Phys. Rev. A (in press)
- 6) 伊師君弘, 柴田行男, 高橋俊晴, 蔦谷 勉, 大坂俊明, 池沢幹彦 : 東北大科研報告 **39**

(1990) 19.

- 7) 吉永 弘, 三石明善: 「光学の測定」飯田修一, 大野和郎, 神前 熙, 態谷寛夫,  
沢田正三編集 (朝倉書店, 東京1967) 68.

## 電子ビーム照射による各種金属の温度分布 (II)

高エ研, 核理研\*, 石川島播磨重工\*\*  
百瀬 丘・今野 収\*・平山英夫  
土屋将夫\*\*・西田耕作\*\*  
石丸 肇

### §1. はじめに

トリスタン入射蓄積リング (AR) 改造<sup>1)</sup>におけるビーム強度増強のためには放射光強度が強くなるのに対応したアブソーバーの強化が必要である。前報告<sup>2)</sup>ではARの8 GeVの放射光のパワー吸収長にアルミ合金の場合近似的に等しい20MeV電子ビームを用いてアルミ (Al) 合金製アブソーバーと金属試料 (Al, Cu, SUS) への照射を行ない、製作したアブソーバーが必要な仕様を満たすことなどを述べた。このテストは放射光と同程度のパワーでかつ厚さ方向分布をもつ高エネルギー電子ビームによる熱負荷テストである。この種のテストは実際の複雑な構造のアブソーバーで問題にしている部分の温度がリアルに観測できる利点がある。今回はトリスタン衝突リング (MR) の30GeVの放射光の吸収長に銅の場合近似的に等しい60MeVのビームを用いた前報告と類似の熱負荷テストと、アブソーバー付きセラミックチェンバーに20MeVの電子ビームを照射した熱負荷テストを行なったので報告する。

### §2. 実験方法

用いた金属試料は前報告と同じもの (Al-10t, 20t, Cu-6t, 25t, SUS-3t, いずれも直径50 mm) である。新たに50x50x (100または200mm) のベリリウム (Be) の角柱と、前回テストしたアルミ合金製アブソーバーにセラミックス角柱 (穴内径断面はほぼ楕円) をろう付けしたセラミックチェンバーを追加した (Fig. 1)。金属試料の厚さが異なるのは、それぞれの金属の場合の等価な吸収長を計算し、試料に堆積されるパワーが異なるようにしたためである。ビーム照射時の試料の設置状態も前報告と同じように大気中のときは架台の上においた試料中心部にビーム中心がくるようにし、また真空中の場合は真空槽内に試料を置き Be窓を介してビームを照射した。温度は照射を開始して定常態に達した後、ビーム電流が一定のとき数点記録し、平均値をとっている。ビーム電流が1~2分程度数%以内に安定するのはわずかしかった。これは温度の測定精度にも影響すると同時に不要なビーム照射をすることにもなっている。

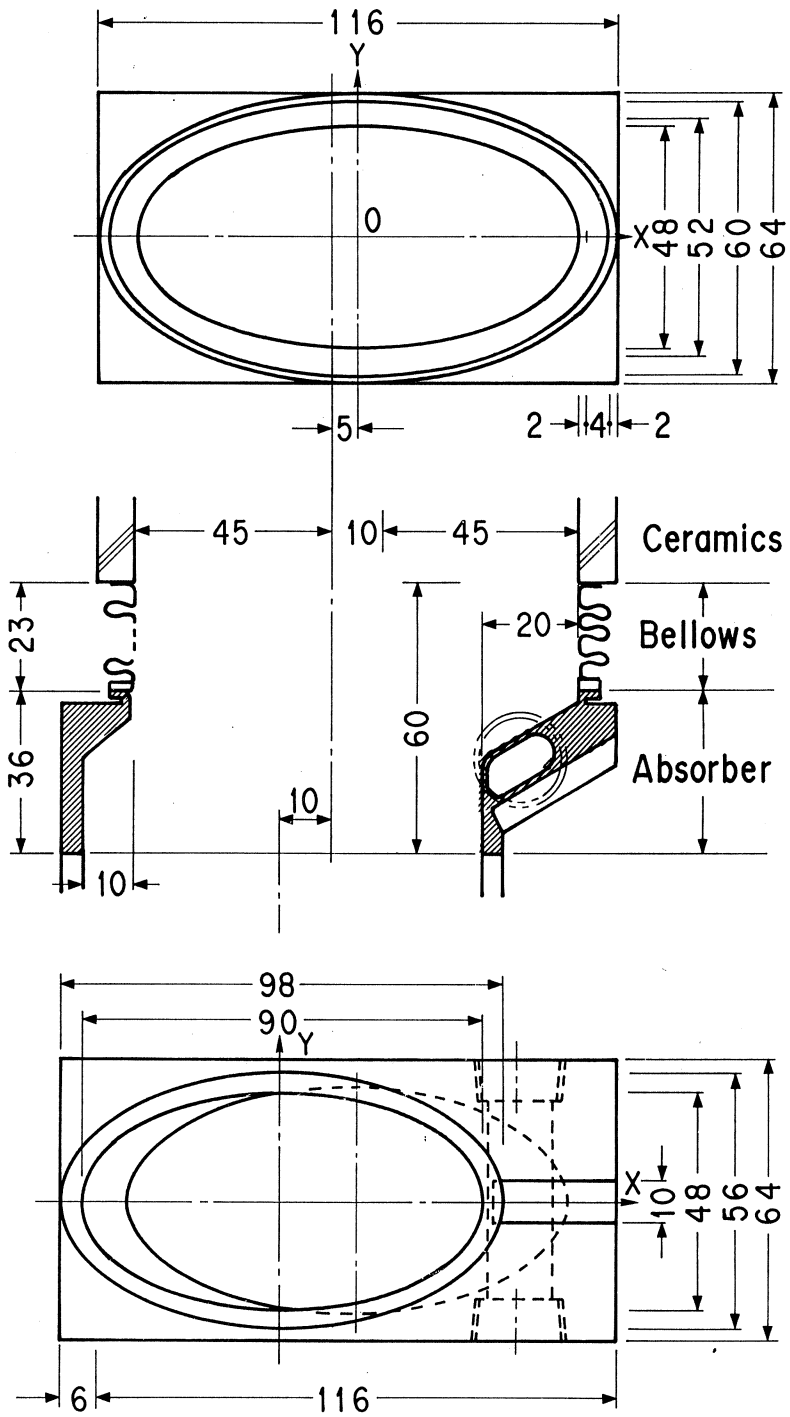


Fig. 1 Structure of a ceramic chamber.

### §3. 結果と考察

金属にたいする照射の結果は前報告の分も含めて Figs. 2-a, b- i, ii, c- i, ii, dに示した。縦軸は温度，横軸は温度計をつけた場所で，0 がほぼ照射電子ビームの中心，1 から9までは5 mm刻みで離れていく位置に対応している。図右上の記号は最初の2桁がビームのエネルギー (MeV)，次のアルファベットのAがアルミ，Bがベリリウム，Cが銅，Sがステンレスを示し，次の数字は厚さ (mm) を，次のアルファベットはAが大気中，Vが真空中の実験を意味し，最後の数字またはCALはそれぞれビーム電流値，計算値を示す。CALと表示のないものは実験値である。

60A10Vの3種と60C6Vの2種では温度分布のピークが試料中心にない。これはビーム位置の試料中心とのずれの影響があることを示している。またビーム断面が真円でない（したがって電流分布も不均一であると予想される）ことの影響も考えられる。

大気中と真空中の結果は60C25VAを除き前者の方が温度は低い (60A20VA, 60C6VA, 20C25VA, 60S3VA) が対流の有無によるものと考えてよいと思われる。

同じエネルギー，電流で厚さの大小の影響を比較すると不明瞭なものもあるが厚いほうが温度は高い (20, 60A-10, 20 ; 20, 60C-6, 25 ; 60B-100, 200)。これは堆積されるパワーの大小に対応し前報告で述べた新アブソーバーの考え方の正しさが裏付けられた。

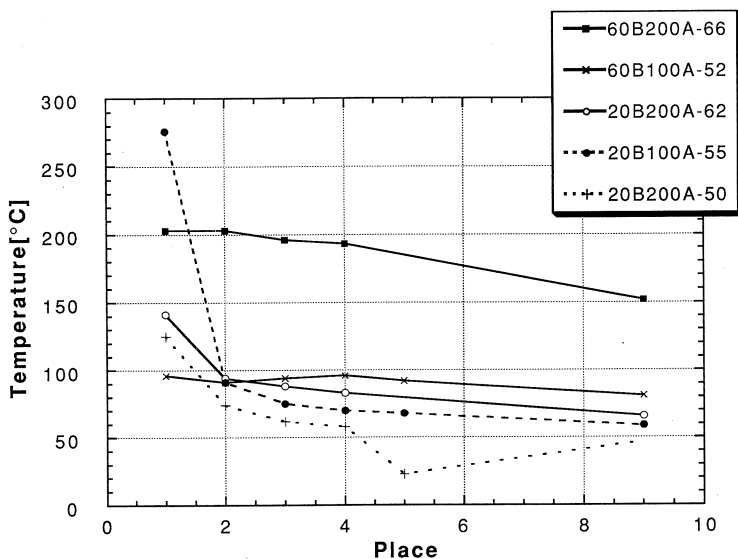


Fig. 2 Temperature distribution during 20 MeV and 60 MeV electron beam radiation on metal samples: a) Be, b) Al, i (20 MeV), ii (60 MeV) c) Cu, i (20 MeV), ii (60 MeV) d) SUS.

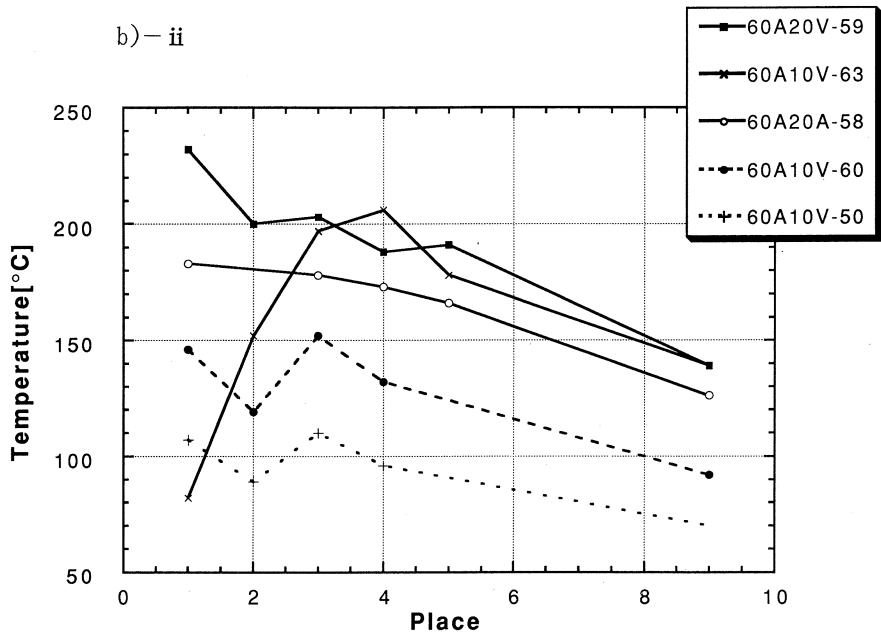
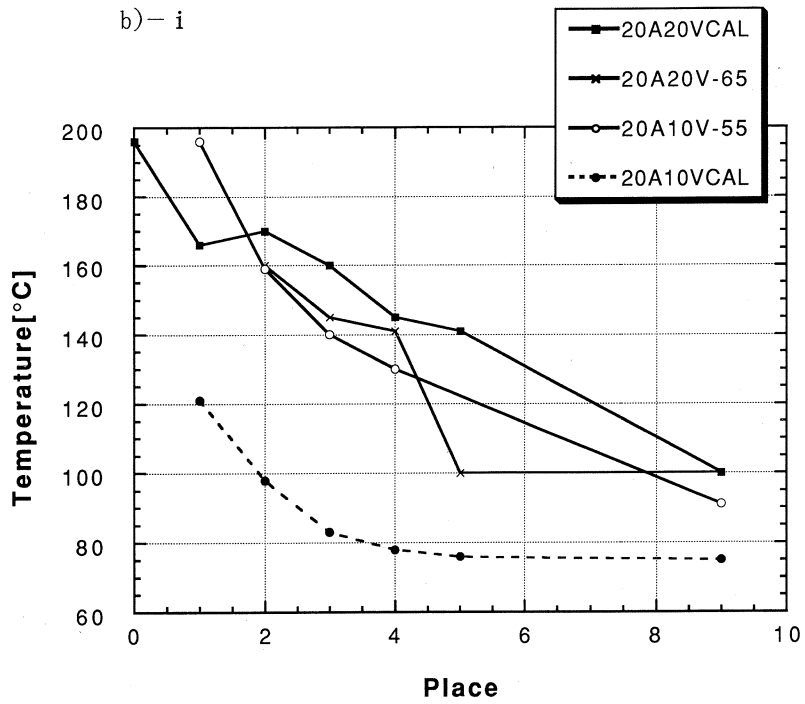


Fig. 2 (Continued).

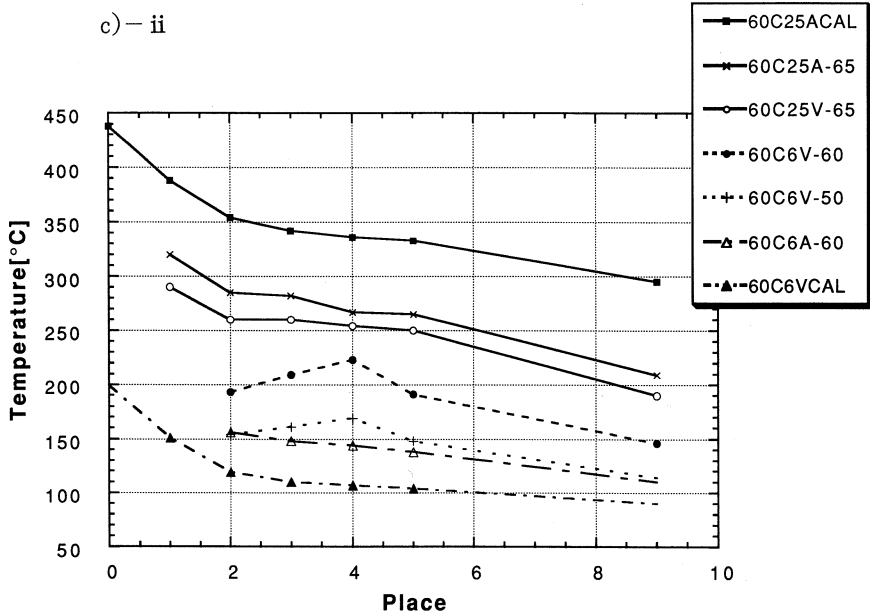
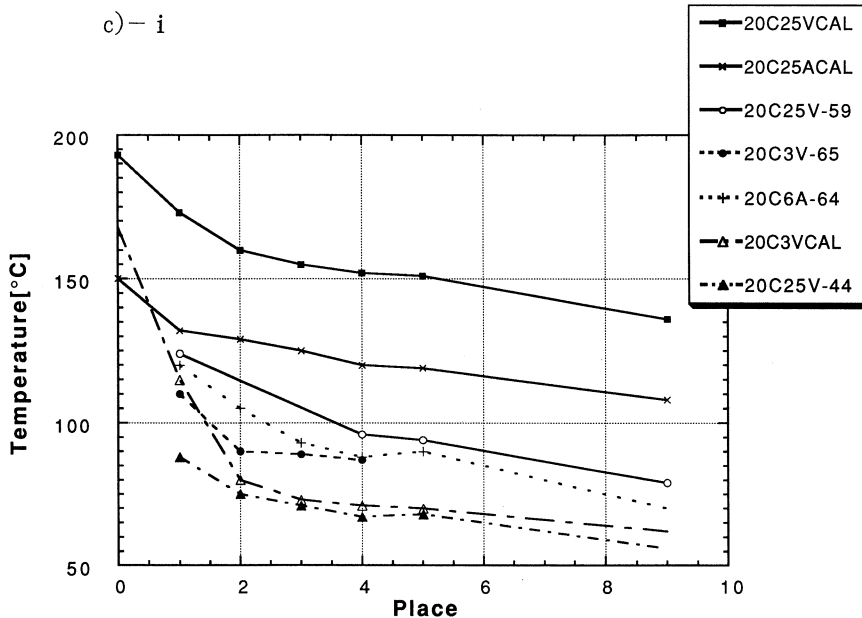


Fig. 2 (Continued).

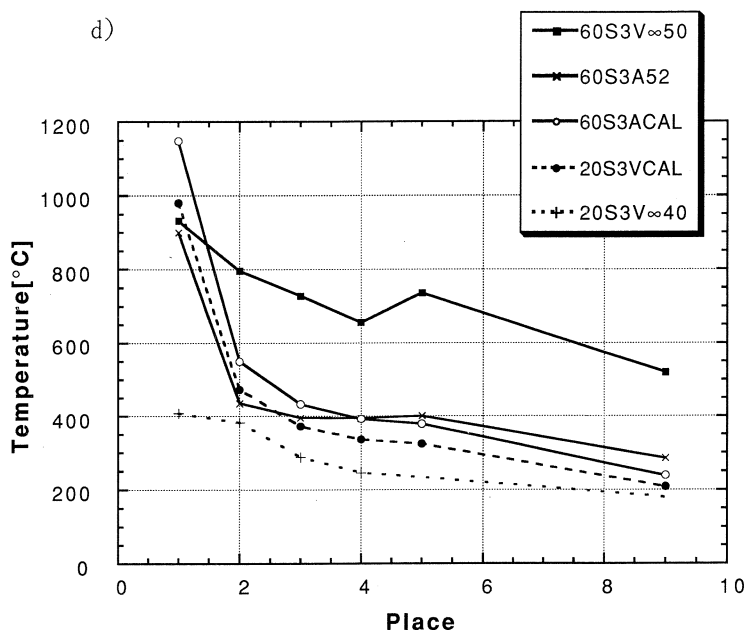


Fig. 2 (Continued).

同じ厚さで電子ビームのエネルギーが違う時は上記の場合と同じく堆積パワーを比較する必要がある。Figs. 3-a, b, c, dにその堆積の計算結果を4種の金属について示した。これらの図で黒点(20MeV)とバツ印(60MeV)は全空間でのエネルギー量, 丸で囲まれたそれぞれは半径2mmの円筒内のそれである。また右端に立つ2本の直線は40mmより後にあるパワーの割合である。そこでアルミの場合の丸で囲まれたほうを見るとピークの $e^{-1}$ になるのは20, 60 MeVの場合それぞれ10, 20mm程度である。一方全空間の方を見ると表示の範囲でほぼ一定だから、特に60MeVの場合は表面から中へ入るに従いパワー密度は減少し、それにかわってエネルギーは広い範囲に広がっていて、それは近似的には表面に頂点がある円錐状と考えられる。この傾向はBeの場合さらに顕著である。CuやSUSの場合には円筒内部の分布は表面から5~6mm位のところにピークがあるので、パワーの分布としては一旦広がり次第にしぼんでいる形が推定される。

前項の Fig. 3 を用いた考察をもとに、粗くはあるが定量的イメージを作る。Beの20MeVの場合は40mmまでの範囲に56.5%あるから10mmの点で14%, 70mm位で100%堆積される。つまりBeの場合は厚さが100mmでも200mmでも堆積パワーの値とその分布場所は同じで、温度計は表面から軸方向長が50mmの範囲にあるから温度表示も熱容量の分を除き同じである。20B100Aと20B200Aが大差がないのはこれで説明できる。一方60MeVでは40mmまでの範囲に19%堆積す



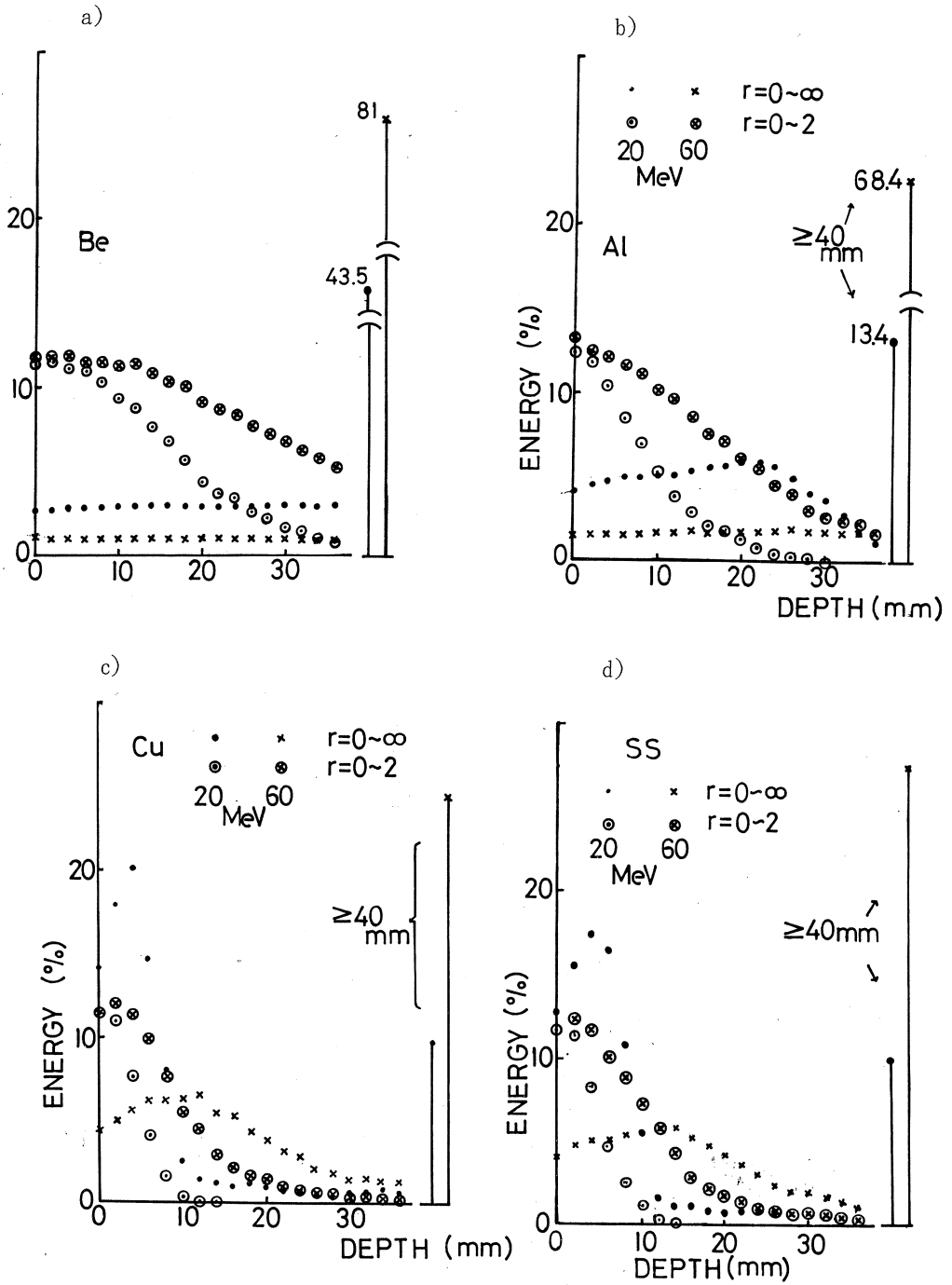


Fig. 3 Energy distribution in infinite area(no circle) and in cylindrical area(with circles) at 20 MeV(dots) and 60 MeV(x) electron beams for Be in a), Al in b), Cu in c), and SUS in d).

るから10mmで5%と近似すると100mmで50%, 200mmで100%となる。この比率は60B100Aと60B200Aの温度上昇の比をほぼ説明する (Fig. 2-a)。

Alの20MeVの場合は40mmまでの範囲で86.6%だから10mmで約20%, 20mmで40%と近似する。また60MeVでは40mmで31.6%だから10mmで約8%, 20mmで約16%と近似する。これから60A20V, 60A10V, 60A20A, 20A20V, 20A10V, 60A10V (2種) では堆積パワーはそれぞれ560W, 300W, 550W, 520W, 280W, 240Wとなり凡その傾向が合致する (Fig. 2-b)。

Cu, SUSの場合はAlやBeの場合のように簡単ではないが厚さが電子ビームのエネルギーに依存する吸収長との比較で薄い場合は後者の場合と同じように考えることができる。計算値と実験値が比較的良く合うのはこのためであると考えられる (Fig. 2-c, d, 20C3V, 20S3V, 60C6V)。一方計算値と40%程度以上合わないのは計算におけるパワー分布が直径4mm内に一様分布としたことが実際の状況とずれが大きくなった場合と考えられる(20C25V)。もちろん前記の電子ビームのずれ, 径の拡大, 不均一のほか材料の形状, 冷却方法の問題の寄与も考えられる。

以上4種の金属試料の温度上昇は試料の寸法の違いを無視するとSUSがもっとも高い。またビームOFF後の定常態へ達する時定数も大きい。さらに試料の放射化の問題もある。著者の一人は照射後のSUS, Cuのレベルの高さに驚いた。これらは材料選定の上で考慮すべき点である。

セラミックチェンバー (アブソーバー) の結果を Table 1 に示す。アルミアブソーバーだけの場合最高測定温度は入射パワー1.2kWで90°Cであった。今回は1.3-1.4kWで110°Cであり仕様を満足する。ただしセラミックス部分 (5, 6) とベローズ部分 (4) の温度も上がっている (なお3, 7, 8はアルミ厚肉部である。7はビーム中心から100mm, 3と8はビーム中心から10mmであるが水冷部から5mm程度の所に位置する。)。これはビームのひろがりの影響とみられる。ビームは30cm大気中を通過して後, アブソーバーに入射している。ビームが大気にでたところでは直径10mmであるからアブソーバー部で40mmになってもおかしくはない。いずれにしてもこの程度のパワーでは使用可能である。残る問題はビーム中心部の最高温度と照射時間やアルミの機械的強度の検討であり, これは数10kVの電子ビームでテストする予定である。

Table. 1 Temperature Distribution during electron beam radiation on ceramic chamber absorber.

| Place | 20MeV1.3kW | 20MeV1.4kW |
|-------|------------|------------|
| 3     | 27 (°C)    | 33 (°C)    |
| 4     | 91         | 102        |
| 5     | 96         | 105        |
| 6     | 91         | 100        |
| 7     | 35         | 40         |
| 8     | 34         | 42         |

#### §4. まとめ

トリスタン ARの 8 GeVおよび MR30GeVの放射光の吸収長にそれぞれ近似的に等しい20 MeV, 60MeV電子ビームを用いて熱負荷テストをおこなった。金属試料への照射実験結果は、電子ビームエネルギーをパラメーターとして板厚とパワー分布の相対的な関係を考慮した説明および計算と凡そ合致する。この結果はセラミックチェンバー用の薄肉アブソーバーの考え方の基であり、チェンバー自体の照射テスト結果でも裏付けられた。今後機械的強度特性の検討を行なう予定である。

本実験を行なうにあたりご協力頂いた東北大学核理研の皆様に深謝いたします。

#### 参 考 文 献

- 1) H. Ishimaru : *Proc. 7th Symposium on Acc. Sci. & Technol., Dec. 12-14, Osaka* (1989) 344.
- 2) 百瀬丘, 今野收, 平山英夫, 石丸肇 : 核理研研究報告 23 (1990) 271.

## BaF<sub>2</sub> $\gamma$ 線検出器の応答関数の測定

東工大理学部, 京大理学部\*, サイクロR Iセンター\*\*,  
核理研\*\*\*, 教養部\*\*\*\*

沢田真也\*・古高和禎・保坂将人\*\*・村上 健  
村上哲也\*・笠木治郎太・石井慶造\*\*・伊藤祥子\*\*\*  
松山日出人\*\*\*・佐々木隆興\*\*\*・寺沢辰生\*\*\*  
須田利美\*\*\*\*・前田和茂\*\*\*\*

### §1. 序

高エネルギー  $\gamma$ 線の測定は原子核物理学の様々な分野で今後とも重要な情報を提供するものと考えられる。例えば, (1)従来から測定されている ( $p, \gamma$ ), ( $n, \gamma$ ) 等の粒子捕獲反応では, 入射エネルギーが数十 MeV 領域にまで拡張され, 非常にエネルギーの高い1粒子の状態からの  $2h\omega \rightarrow 1h\omega \rightarrow g. s.$  の遷移に相当する  $\gamma$ 線が見いだされている<sup>1)</sup>。(2)重イオン融合反応により作られる高温原子核の巨大共鳴崩壊による  $\gamma$ 線が10~30MeVの領域に観測され, その系統的的研究が進められている<sup>2,3)</sup>。(3)重イオン入射反応により  $E_\gamma > 30\text{MeV}$  領域に制動輻射機構によるものと理解される  $\gamma$ 線が見いだされ, 軽, 重イオンによる系統的な研究が必要とされている<sup>4)</sup>。(4)数十MeV以上のエネルギーの  $\gamma$ 線の弾性散乱の質のよいデータは皆無に等しく, 終状態の基底状態と励起状態とを分離した系統的測定が必要とされている。<sup>5)</sup>

我々は大型 BaF<sub>2</sub> 結晶を組み合わせた検出器により, 上述の(1)~(3)のテーマを中心に東北大サイクロトロン (CYRIC), 原子力研究所 (JAERI), 理化学研究所 (RIKEN), 阪大核物理研究センター (RCNP) に於て, 10~100MeV 領域の  $\gamma$ 線の測定を行っており, 将来的には, (4)の研究を東北大核理研に於いても行いたいと考えている。今回は昨年の実験で用いた検出器の応答関数を tagged photon system を用いて  $\gamma$ 線エネルギー20~80MeV の範囲にわたり測定した。ここに報告するのは予備的な解析結果であり, 今後の詳しい解析がより分解能のよい高エネルギー  $\gamma$ 線検出器を設計する上で重要な情報を与えてくれると期待される。

### §2. 実 験

実験では異なった形状の BaF<sub>2</sub>検出器について単色  $\gamma$ 線を直接入射したときのスペクトルを

測定した。使用した検出器は(a)核研タイプを6個組み合わせたもの、及び(b)東工大タイプの7個を組み合わせたものである。いずれの場合も各々の結晶からのシンチレーションは、個々の結晶につけられた光電子増倍管から独立に取り出されるようになっている。

第1図に(a)の形状を示す。1本1本はテーパのついた六角柱で、長さは16cm、テーパ部分は10cmである。この検出器を6本1組にし第2図のように1スタックとして使用した。RCNPでの測定は、このスタックの内側3本の検出器のどれかに $\gamma$ 線が検出されたとき6本全部のsumをとるという方法により行われた。

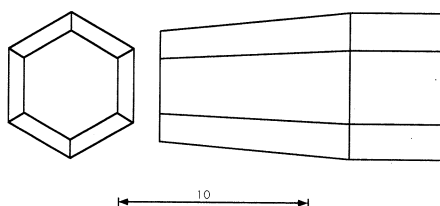
第3図に(b)の形状を示す。長さ20cmの六角中の結晶7本を組み合わせた検出器である。CYRIC, JAERI, RIKENでの測定は、中心の検出器に $\gamma$ 線が検出されたとき7本全てのsumを行うという方法により測定された。

応答関数の測定はまず、1本1本の検出器についてエネルギースペクトルの測定を行った。それにより得られたエネルギー較正を用いて、上述のtrigger条件による測定を行い検出器全体のエネルギースペクトルを得た。

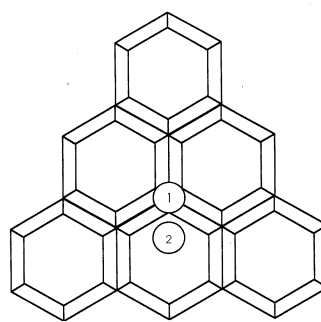
tagged photon は厚さ15cmの鉛のコリメーターで直径約2cmに絞られ検出器を直接照射した。照射は各々の結晶のほぼ中心に行ったが、(a)の場合、テーパ部分の影響を見るため、第2図に示されている①と②の位置に照射した。

### §3. 結果

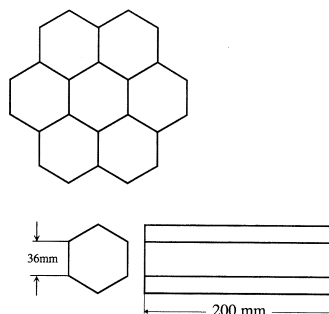
(a)の検出器で測定したエネルギースペクトルを図4, 5, 6図に示す。縦軸は、各エ



第1図 核研タイプ BaF<sub>2</sub> 結晶の形状。厚さ16cmであるが、テーパ部分が10cmある六角柱である。



第2図 核研タイプ BaF<sub>2</sub> 結晶を6個組み合わせて1組にした検出器。①及び②は検出器全体の応答関数の測定の際に $\gamma$ 線を照射した位置を示す。①の部分は②に較べて結晶の厚さが薄くなっている。



第3図 東工大タイプの BaF<sub>2</sub> 結晶7個組み合わせて1組の検出器として使用する。中心の結晶が照射される。

ルギーでの全収量を1としたときの1 MeV当りの収量である。

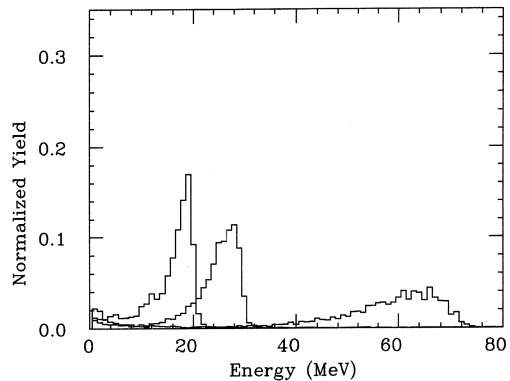
第4図は入射エネルギー16.7, 28.7, 76.5 MeVの $\gamma$ 線で得られた1本の結晶の応答関数を示している。エネルギーが20 MeVを超えると低いエネルギー側へのテールのひきが著しくなり、ピークの位置が入射エネルギーよりも小さくなっていることが判る。

第5図は検出器全体の応答関数であるが、 $\gamma$ 線が図2に示したテーパ部分①を照射したときのものである。この時結晶の実効厚さは10cm程度と考えられる。入射エネルギーは16.7, 28.7, 42.6, 52.6, 68.5, 76.5 MeVである。図から判るように、低いエネルギーに於いても1本の結晶の中心を照射したときよりも分解能が悪く、更に、テールのひきが大きくなっている。40 MeV以上では、もはや明確なピークを作らず、フラットな応答関数になっている。これは、高エネルギー $\gamma$ 線の計測にとっては、検出器結晶の厚さが決定的に重要であることを示している。

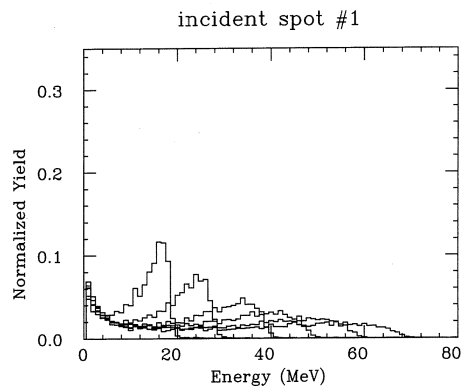
第6図に $\gamma$ 線を第2図の②の位置に照射したときの検出器全体の応答関数を示す。入射エネルギーは第5図と同じである。入射 $\gamma$ 線

に対して結晶の厚さが16cmとなったため、30 MeV以下での応答関数は、結晶1本の場合に較べて格段に良くなっているのが判る。しかしながら、76.5 MeVでの改善はわずかである。これは、76.5 MeVの高いエネルギーの $\gamma$ 線が前方に作り出した $\gamma$ 線シャワーを捕まえるのに、回りの結晶は余り寄与できていないことを示している。

(b)の検出器で測定したエネルギースペクトルを第7, 8図に示す。第7図は中心の結晶だけで測定された16.7 MeVから76.5 MeVまでの応答関数である。結晶の厚さ16 cmの場合の



第4図 核研タイプの結晶一本で測定された応答関数。入射 $\gamma$ 線のエネルギーは16.7, 28.7, 76.5 MeVである。



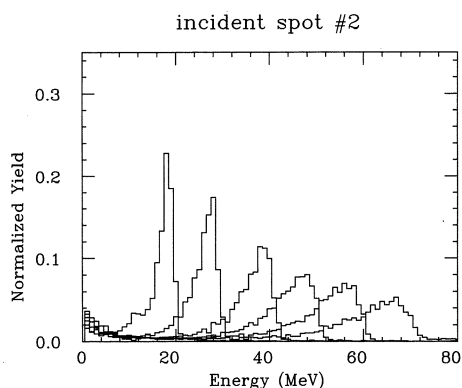
第5図 核研タイプの結晶を組み合わせた検出器全体での応答関数。図2に示されている①の位置を照射したときに得られたものである。入射エネルギーは16.7, 28.7, 42.7, 52.6, 64.5, 76.5 MeVである。

第4図と比較すると、76.5MeVでのピークがより顕著になっていることが判る。更に、第6図の(a)の検出器全体の応答関数と比較しても40MeV以上の $\gamma$ 線に対しては余り変わらないものとなっていることが判る。

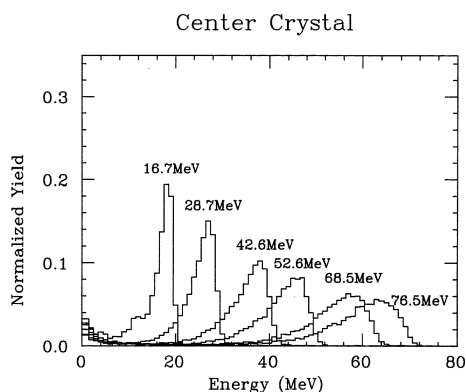
第8図に検出器全体の応答関数を示す。図から判るように、検出器全体の応答は測定したエネルギー範囲全てにわたって著しい改善がみられる。ピークの高さはどのエネルギーでもほぼ2倍となっている。40MeV以上では、テールのひきが目立ってくるが、半値幅は70MeVに至るまではほぼ6%程度である。

#### §4. まとめ

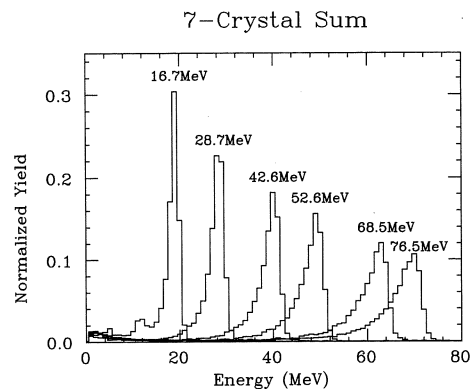
エネルギー16~76MeVの $\gamma$ 線に対して異なった形状のBaF<sub>2</sub>検出器の応答関数を測定した。厚さ16cmでテーパのある結晶を6個組み合わせさせた検出器と厚さ20cmの結晶を7個組み合わせさせた検出器と比較した場合40MeV以上の $\gamma$ 線に対して顕著な差があらわれた。後者の検出器を用いると、約6%の分解能で数十MeV領域の $\gamma$ 線を測定できる事が判った。いかにしたらテールのひきがより小さな応答関数が得られるか、今後の詳しい解析に基づき検討する予定である。



第6図 図5と同様に図2に示されている②の位置を照射して得られた応答関数。



第7図 東工大タイプの結晶1本で測定された応答関数。



第8図 東工大タイプ結晶を組み合わせさせた検出器全体での応答関数。

## 参 考 文 献

- 1) M. A. Kovash *et al.* : Phys. Rev. Lett. **42** (1979) 700.
- 2) J. O. Newton *et al.* : Phys. Rev. Lett. **46** (1981) 1383.
- 3) K. Yoshida *et al.* : Phys. Lett. **245B** (1990) 7.
- 4) E. Grosse *et al.* : Europhys. Lett. **2** (1986) 9.
- 5) E. Heyward and B. Ziegler : Nucl. Phys. **A414** (1984) 333.



## Low Temperature-High Pressure Apparatus for TOF Neutron Diffraction

K. Kamigaki, Y. Isikawa, K. Mori,  
T. Suzuki † and S. Tomiyoshi ††

*Department of Physics, College of Liberal Arts, Toyama University, Toyama 930,*

*† Department of Physics, Tsukuba University, Tsukuba 305, and*

*†† Institute for Materials Research, Tohoku University, Sendai 980*

### §1. Introduction

In the time-of-flight (TOF) method of neutron diffraction, the diffraction angle is fixed at a desired value and no scanning movement is necessary. Therefore, some flexibilities are expected for the design of apparatus used under special environmental conditions. The present authors constructed an apparatus to be used for experiments under high pressure and low temperature. High pressure is generated in a piston-cylinder type cell, and the cell is cooled by a small refrigerator. The apparatus is used for the study of polymorphism in heavy ice.

### §2. *In situ* control of pressure and temperature

In the study of polymorphism of materials, structural change occurs under some critical conditions, and hysteresis is encountered occasionally. If the clamped cell is used for the high pressure study, pressure is preloaded and temperature is scanned. For the precise study, temperature is fixed and pressure is scanned in a complementary way. Hence, *in situ* control of pressure and temperature is planned to realize in the present apparatus.

High density form of amorphous ice was discovered in a following way : cooling the hexagonal ice down to 90 K at first, then pressurize to 1 GPa and reduce the pressure to 1 bar rapidly.<sup>1)</sup> For the formation of the high density phase, the pressure must exceed a critical value on the extrapolation of the liquidus-solidus interface to low temperatures. In studying the mechanism of formation and crystallization of such a dense form, the pressure and temperature must be controlled in a way as desired. The structure of these

phases must be studied in the *in situ* condition. The neutron diffraction of ice just formed in the cell will be one of the direct ways to check its form. The present apparatus will be useful for such works.

### §3. Apparatus

The high pressure cell is a piston and cylinder type, loaded with a hydraulic ram through thermal insulators. Temperature of the cell is controlled by a refrigerator, connected thermally with a copper fabric. The main feature of the present system is very close to the former one,<sup>2)</sup> which is cooled by liquid nitrogen contained in the reservoir, principal modification is to use the refrigerator for the cooling. In the system, a strong power-generating hydraulic ram is combined with a delicate refrigerator. Duality of high strength and low heat-loss is the most important point in the design.

A perspective view of the system is shown in Fig. 1. The cell *C* reinforced with a steel ring and covered with a boron-plastic shield is placed at the center, thermally isolated with a fiber-reinforced epoxy cylinder *D*. The cell is connected to the refrigerator with a fabric *F* woven by thin copper wires. The piston *P* is driven with the hydraulic ram *B* in the direction along the arrow, and pressurize the specimen held in the center hole of the cell. A plastic rod *E* is inserted between the piston and the ram to reduce the heat flow. Main components are contained in the vacuum chamber *V*. The size of cylinder hole is 8, 10, 12, or 15 mm in diameter, the length of the specimen is 50 to 70 mm, the size of slits for neutron beams is 4 to 5 mm in width and 40 mm high. The capacity of the hydraulic ram is 20 ton, and the cooling power of the refrigerator is 10 watts at 20 K.

The neutron beam is introduced to the cell through slits cut on the steel ring and on

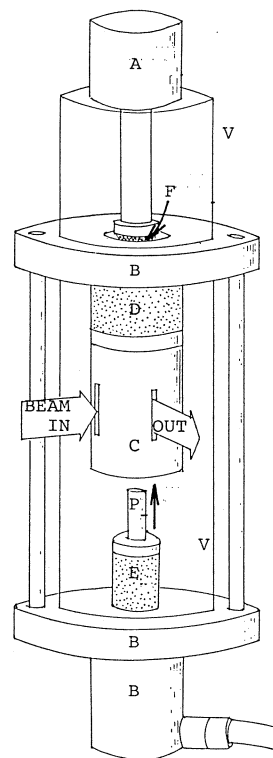


Fig. 1 Perspective view of the apparatus.

the plastic shield. The diffracted beam goes out through slits prepared at some fixed angles and guided to neutron detectors. The angle is selected primarily according to the aim of experiment, or what part of the diffraction pattern is laid emphasis in the analysis. Furthermore, some geometrical considerations are taken into account to reduce the extra-scattering contained in the pattern : Contamination of extra-peaks occurs when the neutron detector looks at a part of the cell illuminated by the incident beam. The diffraction angle is set around  $90^\circ$  to reduce such effect. For angles set at a small value near  $0^\circ$  or at a large value near  $180^\circ$ , it is preferable to make thinner the slit width. When the material of the cell has many diffraction peaks, separation of the extra-peaks will be difficult, as frequently encountered in the angle dispersive experiment. If the cell is composed of materials such as aluminum, iron etc. with a simple structure, the contamination is local, though intense but number is few. The interatomic spacing and the crystal structure will be changed with pressure, and precise care must be taken in designing the cell and its environment.

#### §4. Experimental results

The neutron diffraction experiment was carried out by MRP diffractometer at KEK, Tsukuba, and by MARK 20 diffractometer at Laboratory of Nuclear Science, Tohoku University, Sendai. A diffraction pattern obtained for  $D_2O$  ice at 55 K is shown in Fig. 2, the diffraction angle was  $90^\circ$ , the peak to background ratio is comparatively good, and lines (201) and (004), and (222) and (114) are separated clearly. The structure is analyzed as a hexagonal,  $P6_3/mmc$ , and lattice parameters obtained are  $a=4.50 \text{ \AA}$  and  $c=7.34 \text{ \AA}$ . The apparatus thus constructed is proved to be useful for the neutron diffraction of polycrystalline samples at low temperatures.

#### Acknowledgement

The authors wish to express their hearty thanks to Prof. N. Niimura and Dr. T. Kajitani for their support and advice.

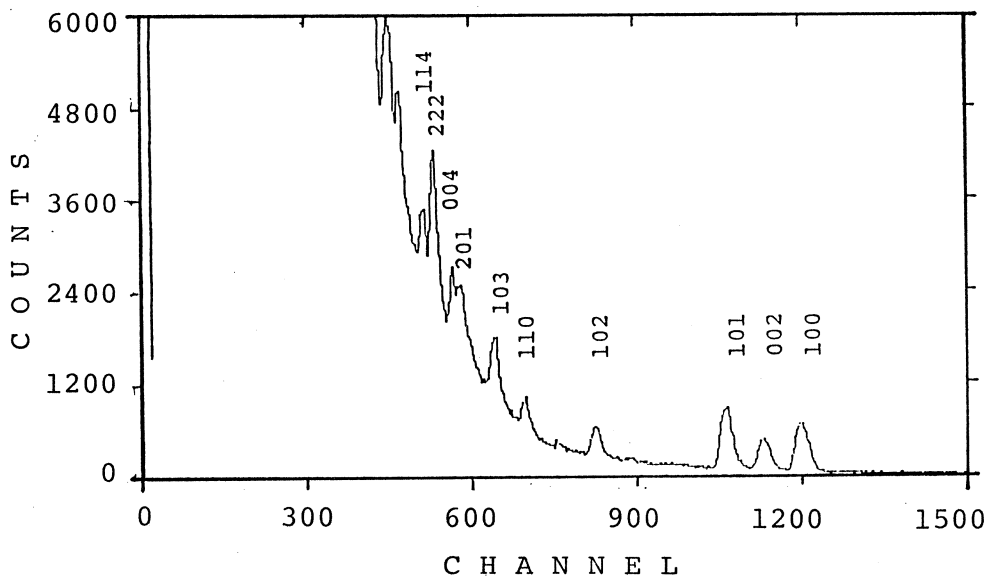


Fig. 2. TOF diffraction pattern for D<sub>2</sub>O ice at 55 K.

### References

- 1) O. Mishima, L. D. Calvert and E. Whalley : Nature **310** (1984) 393.
- 2) K. Kamigaki : Res. Rep. Lab. Nucl. Sci. **17** (1984) 62.

## IV. 加 速 器 稼 動 状 況

## 平成2年度マシン報告

## マシングループ

栗原 亮・浦沢茂一・大沼忠弘  
小山田正幸・柴崎義信・高橋重伸  
中里俊晴・武藤正勝

## 概 況

平成元年度に起きたクライストロン集束コイルの水漏れ対策のため、クライストロン集束コイル2基を購入し水漏れ事故にそなえた。また、4月にクライストロンのアノード部からの水漏れが二件発生した。原因は製作年が、かなり古いため水管部分の傷みと思われる。これらの対策として、パルスタンク内の点検を励行し、早期発見につとめた。

一般的に冷水製造装置（冷凍機）は、冷却水温度の低温時に異常状態に陥る率が高い。元年度より、冷却水温度の低温時は、冷却水のバイパス経路の通過量を制御して、防ぐ方法を実施した。その結果、冷却系の運転は、低温時にも安定に動作し、余裕の運転ができる。

I系の振り分け電磁石用直流電源は、安定度が経年変化で不安定になり、構成部品も入手が困難なため、ソフトウェアによる電流設定に対応できる機種に更新した。

電子銃の長期間の使用により、ガンエミッションの低いところで制御が不調になった。現象としては、設定電圧のわずかな変化でエミッションが大幅に変化する。ガンの交換を2月工事に行い、この現象は、解消された。

ライナックの制御は、ハードワイヤー方法とソフトウェア方式の混在期であるが、円滑な操作とリアルタイム性の改善と向上を行っている。

真空系は、イオンポンプと電源の老朽化により、ガス放出による真空の悪化と電源保護回路の動作がかさなりクイックバルブの不要な動作を引き起こした。このため、イオンポンプとクイックバルブの連動を一部解除した。

ショートバンチ実験のため取り付けたチョッパー部の透過電流が通常の1/10と低いために、入射系をもとに戻した。このためガンと加速管のエイジングが再び必要となった。ライナックは、加速管からのガス放出量の問題で、通常の立ち上げ状態への移行に3週間かかった。

クライストロンパルサーに導入したサイトロンFT175は、非常に安定しており、今後も逐次更新をおこなう。

## マシンタイム実施状況

4月に、クライストロンのアノード部からの水漏れが二件発生し、クライストロンの交換とパルストランスタック内の復旧作業、クライストロンのエージング後、II系の実験を再開した。

ECS系を用いた $\gamma\pi$ 実験にハローが生じたので、実験グループと原因調査を行った。その結果ECS系にステアリングコイルを取付けて、 $\gamma\pi$ の実験を予定通り行なった。

平成3年2月のショートバンチ実験のさい電子ビームの透過率が向上せず、他の実験に支障が予想され、装置撤去を行った。このため、再度ガンと加速管の真空エージングをおこない、実験再開までに日数を要した。しかし、マシンタイムは、なんとか大幅な繰越もなく実施できた。第1表にマシンタイム実施状況を示す。

第1表 平成2年度マシンタイム実施状況。

| 課 題              | 前 期         |          | 後 期          |             | 平成2年度              |    | 備 考                  |
|------------------|-------------|----------|--------------|-------------|--------------------|----|----------------------|
|                  | 割当          | 実施       | 割当           | 実施          | 割当                 | 実施 |                      |
| $\gamma\pi$ (坪田) | 9+4*        | 13       | 8            | 8           | 17+4*              | 21 | 2 シフト繰返              |
| " (山屋)           | 6           | 3        | 6            | 7           | 12                 | 10 |                      |
| ee'n (斎藤)        | 15          | 15       | 17           | 17          | 32                 | 32 |                      |
| ee'p (菅原)        | 12          | 12       | —            | —           | 12                 | 12 |                      |
| Tag (Thompson)   | 17          | 16       | —            | 1           | 17                 | 17 |                      |
| " (須田)           | —           | —        | 7            | 7           | 7                  | 7  |                      |
| " (寺沢)           | 5           | 0        | 18           | 22          | 23                 | 22 | 1 シフト繰越              |
| ep。 (宮瀬)         | —           | —        | 6            | 6           | 6                  | 6  |                      |
| $\pi$ -mag       | —+4*        | 4        | —            | —           | —+4*               | 4  |                      |
| (核物理)            | ( 64+8* 63) | ( 62 68) | (126+8* 131) |             |                    |    |                      |
| ND               | 18+4*       | 22       | 16           | 14          | 34+4*              | 36 | 2 シフト繰越              |
| RI               | 22+2*       | 23       | 18           | 18          | 40+2*              | 41 | 1 シフト繰越              |
| 物性               | 3           | 2        | 3            | 3           | 6                  | 5  | 1 シフト返上              |
| 加速器測定器           | 23+3*       | 23       | 23           | 23          | 46+3*              | 46 | { 2 シフト返上<br>1 シフト繰越 |
| 合 計              | 130+17* 133 | 122      | 126          | 252+17* 259 | 3 シフト返上<br>7 シフト繰越 |    |                      |

\* 先期末実施のための繰越

## 保 守

パルサー系では、4月16日クライストロンパルサー5号機(KP#5)のアノード部から水漏れ。4月19日クライストロンパルサー3号機(KP#3)のパルストラנסタンク内に水漏れを発見し、実験を中止した。水漏れ箇所を調査の結果アノード部水管からの水漏れと判明。クライストロンを交換し、現在支障なく稼働している。

真空系はB部の性能低下がみられ、対策として、イオンポンプ交換を行った。しかし、予算の関係から全数の交換をできなかったため、依然として十分な状態ではない。このため、今後加速管列B部のイオンポンプとその電源の更新を考えている。

ガンエMISSIONの波形が悪く調整を数度行ったが、中々良いところで動作しないことがあり、出力ビーム電流のエネルギー構成に影響がある。これを改善できれば、より安定なビームを供給できるものと考え、パルス発生回路を改修予定である。

スリットは、使用年数の長期化と操作による摩耗で動作不良が目立ってきており、更新を各系について考えている。いちぶのスリットについては、完成しており、今は微調整の作業を進めている。据え付け工事は、8月を目標にしている。残りのスリットについては、今後更新を進める予定である。

平成2年度は、パルスタンク内に水が混入する事故が短期間に集中し、早めに発見し対応すれば、被害の範囲が狭く、復旧工事期間の短縮がはかられる。

I系スイッチマグネットM5電源の更新をおこなった。ビームトランスポート系の直流電源の更新は、入射部のG1, G2, G3電源の更新で終了する。分析電磁石の消磁電源は、ついに動作が不確実になり、電源を更新する予定である。なお、電源周辺をふくめ現状にあったシステムに変更する。

クライストロンパルサーのサイラトロンドライブ回路と集束コイル電源の更新を数年来続けてきた。これらを数年来使用してきたが大きな故障は、発生していない。今年度も更新を遂行し、将来には予備品を揃えるまで継続したいとおもう。

前回A部の加圧系高周波導波管と真空系高周波導波管の間のRF窓は、1985年に更新した。そこで、前回と同様に、A部全数の更新を来年度以降におこなう予定である。

基本的な設備や装置にもかなり傷みや老朽化が、目立ってきた。総体的に不具合の点多く、決定的な故障・破損で稼働しない状態ではないが宿題が積み残されていく様で一抔の不安がこる。

たとえば上記のクライストロンなどは、製造年度が古く使用時間も多い状態であった。予備



品も同じ程度のものであり新しいものを定期的に確保する必要がある。在庫がないサイラトロ  
ンについても同様に定期的に確保する必要がある。

昨年同様大きな設備の更新は、進展していないので、これらの故障は復旧に、時間を要する。  
平成2年度の主な定期工事内容は、以下のとおりです。

#### 4月工事

|        |                        |
|--------|------------------------|
| ビーム輸送系 | M5（第一実）電源更新            |
| 真空系    | B部イオンポンプ6台交換，真空立上げ     |
| 純水製造   | BF，WG，ACC系補給，冷水系の水入れ替え |

#### 6月工事

|        |  |
|--------|--|
| 冷却系    | VAP0洗浄　KP#1，2，3，4，5，一部手直し，タワー清掃，<br>加速管系ヒーター一部交換 |
| 真空系    | B部リークテスト，B部の真空エージング                              |
| パルサー関係 | グリッドパルサー点検整備                                     |

#### 8月工事

|        |   |
|--------|---|
| 冷却系    | BFデミネ樹脂交換   |
| 真空系    | I系ゲートバルブ交換。第1実験室G.V.，RI窓交換                                      |
| パルサー関係 | クライストロンパルサー用サイラトロドライブ回路のPFNコンデンサー<br>をパルス仕様に交換<br>ガン・エミッション波形調整 |
| 制御系    | 移相器制御方式の変更  |

#### 10月工事

|        |   |
|--------|---|
| 冷却系    | 冷却系インターロック回路工事                                      |
| パルサー関係 | クライストロンフォーカスコイル電源（#1，#4）の交換<br>ガングリッド・ナノセック・パルサー点検， |
| 制御系    | II系手動シーケンサー整備                                       |

#### 12月工事

|        |  |
|--------|--|
| パルサー関係 | KP#4サイラترون交換，KPフォーカスコイル電流検出回路整備<br>電子銃エージング準備 |
|--------|--|

（年末）

|     |                |
|-----|----------------|
| 冷却系 | クリーニングタワー系の水抜き |
|-----|----------------|

|         |   |
|---------|---|
| 制御系     | 制御系 ( $\mu$ VAX) のソフト交換                                 |
| 2月工事    |   |
| 冷却系     | 加速管冷却管接続部一部交換, ショートバンチ装置へのつなぎこみ                         |
| パルサー関係  | 電子銃交換   |
| 制御系関係   | ショートバンチ用移相器・パワーデバイダ制御プログラム, つなぎこみ<br>Q電磁石電源1台交換, 移相器の修理 |
| 真空系     | I系のリーク修理, ガンと加速管のエージング                                  |
| ショートバンチ | 据え付け, 撤去, ガン周辺の工事                                       |

# V. 論 文 リ ス ト

## 論文リスト

核理研共同利用の成果を核理研研究報告以外の学術雑誌に掲載された論文（1989年1月～12月）の題目を収録しました。

## I 原子核物理

1. Electrofission of  $^{208}\text{Pb}$  in the Intermediate Energy Region.

J. D. T. Aruuda-Neto, M. Sugawara, H. Miyase, T. Tamae, K. Abe

M. Nomura, H. Matsuyama, K. Namai, M. L. Yoneama and S. Simionatto :

Phys. Rev. C41 (1990) 354.

## II 物性物理

1. Optical Properties of Plastically Deformed and Electron Irradiated Indium Phosphide.

Y. Horii, M. Suezawa and K. Sumino : Deffect Control in Semiconductors

(ed. K. Sumino, 1990, North-Holland)p. 1283.

2. Clustering of Silicon Atoms in Gallium Arsenide.

M. Suezawa, A. Kasuya, Y. Nishina and K. Sumino : Conf. Phys. of Semicon.

(eds. E. M. Anastassakis and A. Joannopoulos, 1990, World Scientific) p.

678.

## III 放射化学

1. A New Approach of the Study of Normalized Appearance Energy of Hot Atom Reaction Product in Optical Isomers of Tris(Acetylacetonato)Ruthenium.

I. Kaneko, T. Sekine, K. Yoshihara : J. Radional. Nucl. Chem. Lett. 144

(1990) 89.

2. Effective Hot Reaction Zone, Caging Energy and Normalized Appearance Energy in Ruthenium Complexes.

H.Matsue, I. Kaneko, T. Sekine and Y. Yoshihara : *ibid.* 145 (1990) 271.

3. Analytical Sensitivities for Thirty-six Elements in Cellulose Matrix by Means of High-Energy Photon Activation and Low-Energy Photon Detection.  
T. Kato, T. Sato and K. Mori : *Anal. Sci.* **6** (1990) 103.
4. Determination of Arsenic and Other Elemental Abundances in Marine Macro-Algae by Photon Activation Analysis.  
N. Suzuki and Y. Iwata : *Appl. Organomet. Chem.* **4** (1990) 287.
5. Selective Preconcentration of Rare Earth Elements by Substoichiometric Precipitation to the Neutron Activation Analysis of Biological Material.  
Y. Iwata, H. Imura and N. Suzuki : *Anal. Chim. Acta* **239** (1990) 115.
6. 日本海東縁久六島の鮮新世アルカリ玄武岩.  
福留高明, 吉田武義, 長尾敬介, 板谷徹丸, 田上誠二 : *岩鉱* **85** (1990) 10.
7. 活動的縁辺部における白亜紀火成活動の下部構造—微量元素からみた北上山地白亜紀深成岩類の特徴—.  
蟹沢聰史, 吉田武義 : *地球* **12** (1990) 407.
8. 東北地方を覆う古代の珪長質テフラ '十和田一大場浮石' の同定.  
山田一郎, 井加克弘 : *第4紀研究* **29** (1990) 121.
9. 東伊豆単成火山群の岩石学.  
宮島 宏 : *岩鉱* **85** (1990) 315.
10. ゼオライトガラスにおけるウランの破壊特性.  
三村 均, 石原義尚, 秋葉健一 : *東北大学選鉱精錬研究所所報* **46** (1990) 105.

#### IV 加速器・測定器

1. Coherent Synchrotron Radiation.  
T. Nakazato, M. Oyamada, N. Niimura, S. Urasawa, R. Kato, Y. Shibata, K. Ishi, T. Ohsaka, T. Takahasi, H. Mishiro, M. Ikezawa, Y. Kondo, T. Nanba and Y. Torizuka : *Particle Accelerators* **33** (1990) 141.
2. Coherent Synchrotron Radiation by and Electron Linear Accelerator.  
T. Nakazato, M. Oyamada, N. Niimura, S. Urasawa, R. Kato, Y. Torizuka, Y. Shibata, K. Ishi, T. Ohsaka, T. Takahasi, H. Mishiro, M. Ikezawa and Y. Kondo : *Proc. 2nd In Symp. on Advanced Nuclear Energy Research, Mito*

(1990) p. 586.

3. An Extremely Strong Radiation Source in the far Infrared to Submillimeter Wavelength Region by Coherent Synchrotron Radiation.

T. Nakazato and M. Ikezawa : Science & Technology in Japan 9 No.33 (1990) 57.

4. A Coherent Synchrotron Radiation Source Using an S-band Linac.

M. Oyamada and Coherent Synchrotron Radiation Group : *Proc. 4 th China-Japan Joint Symposium on Accelerator for Nuclear Science and Their Applications, Beijing, 1990.*

5. Coherent Synchrotron Radiation.

T. Nakazato and Coherent Synchrotron Radiation Group : *Proc. 4 th Advanced ICFA Beam Dynamics Workshop on Collective Effects in Short Bunches, Tsukuba, Japan, (1990) p. 171.*

6. コヒーレント放射光 (最近の研究から)

池沢幹彦 : 日本物理学会誌 45 (1990) 564.

編 集 委 員

齋 藤 悌二郎 (委員長)      寺 沢 辰 生  
新 村 信 雄                      梶 本 和 義

核 理 研 研 究 報 告   第24卷 第1号

1991年6月発行

発行所 東北大学理学部附属原子核理学研究施設  
         仙台市太白区三神峯1-2-1(郵便番号982)  
         電話 022-245-2151 (代)

印刷所 株式会社 東北プリント  
         仙台市青葉区立町24番24号  
         TEL (263) 1166 (代)

RESEARCH REPORT OF  
LABORATORY OF NUCLEAR SCIENCE  
TOHOKU UNIVERSITY

Volume 24 Number 1 June 1991

Laboratory of Nuclear Science,  
Tohoku University,  
1-2-1, Mikamine, Taihaku, Sendai 982, Japan